



Etudes texturales en 2D et 3D des produits des explosions vulcaniennes du volcan Soufrière Hills, 1997 (Montserrat)

Thomas Giachetti

► To cite this version:

Thomas Giachetti. Etudes texturales en 2D et 3D des produits des explosions vulcaniennes du volcan Soufrière Hills, 1997 (Montserrat). Sciences de la Terre. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2010. Français. NNT: . tel-00463901

HAL Id: tel-00463901

<https://theses.hal.science/tel-00463901>

Submitted on 15 Mar 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'Ordre : D.U. 2012

UNIVERSITE BLAISE PASCAL - CLERMONT-FERRAND II
(U.F.R. de Recherche Scientifique et Technique)

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES

THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

Spécialité : Volcanologie

par

Thomas GIACHETTI

Titulaire du Master 2 Recherche :

« Processus magmatiques et métamorphiques – Volcanologie »

Etudes texturales en 2D et 3D des produits des explosions vulcaniennes du volcan Soufrière Hills, 1997 (Montserrat)

Thèse soutenue publiquement le 22 janvier 2010 devant la commission d'examen composée de :

Costanza Bonadonna
Edouard Kaminski
Alain Burgisser
Didier Laporte
Timothy H. Druitt
Karim Kelfoun

Université de Genève
IPGP, Université Paris Diderot
ISTO, Université d'Orléans
LMV, Université Blaise Pascal
LMV, Université Blaise Pascal
LMV, Université Blaise Pascal

Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur, Président du jury
Directeur de thèse
Directeur de thèse

Etudes texturales en 2D et 3D des produits des explosions volcaniennes du volcan Soufrière Hills, 1997 (Montserrat)

En 1997, le volcan Soufrière Hills a connu deux périodes d'activité volcanienne, impliquant 88 explosions. Chacune de ces explosions a vidangé la partie supérieure du conduit sur 0,5 à 2 km. Ce travail de thèse visait à comprendre et quantifier par analyse texturale des produits naturels, les processus de vésiculation du magma se produisant durant ces explosions volcaniennes. Cette étude comporte des mesures en 2D par analyses d'images, des mesures en 3D par microtomographie à rayons X, une étude texturale détaillée de bombes en croûte de pain et des analyses chimiques comprenant notamment des mesures de teneurs en eau (par microspectrométrie Raman) et en chlore dans les verres matriciels.

L'analyse en 2D nous a permis de mettre en évidence la présence de plusieurs populations de vésicules. Les plus petites (inférieures à quelques dizaines de microns) sont syn-explosives, tandis que la plupart des grandes vésicules ($>$ plusieurs centaines de μm), dans les ponces, sont pré-explosives. Environ 15% des grandes vésicules dans les ponces et toutes celles présentes dans les bombes en croûte de pain sont créées par la fracturation syn-explosive de phénocristaux d'amphiboles. Une population de vésicules de taille intermédiaire, formées par la coalescence des petites vésicules, est visible dans les ponces. La nucléation syn-explosive s'est produite de façon hétérogène sur des microlites de magnétite, les bulles ont ensuite grandi principalement par décompression. La coalescence a affecté toutes les bulles plus grandes que quelques dizaines de microns.

La microtomographie à rayons X nous a permis d'obtenir une vision en 3D du système. Pour la première fois, des distributions de tailles de vésicules et de cristaux ont été réalisées jusqu'à $\sim 2 \mu\text{m}$ en combinant plusieurs jeux de données. Les observations effectuées ainsi que les paramètres quantitatifs extraits de ces données sont en accord avec ceux issus de l'analyse en 2D. De plus, la 3D nous a permis de contraindre quantitativement la coalescence. Celle-ci s'est produite entre vésicules voisines, sans distinction de tailles.

L'analyse texturale des bombes en croûte de pain a montré que ces échantillons ont subi un processus de vésiculation intermédiaire entre les échantillons denses provenant du bouchon dégazé et les ponces. La vésiculation post-fragmentation de leur intérieur représente le mécanisme principal provoquant la fracturation de la bordure plus dense, donnant l'aspect croûte de pain.

Les analyses chimiques ont montré qu'il existe une corrélation entre la teneur en eau des verres matriciels et la texture des échantillons. Les ponces peuvent retenir beaucoup d'eau (jusqu'à 2,8 %pds) tandis que les échantillons denses et les bombes en croûte de pain sont plus dégazés. La teneur en chlore mesurée est constante dans tous les échantillons et peut s'expliquer par un coefficient de distribution faible (~ 5) entre la phase vapeur et le liquide. Le dégazage s'est fait en système partiellement ouvert entre deux explosions successives ($\sim 10\text{h}$).

Nous avons démontré que la vésiculation syn-explosive était importante lors de chaque explosion volcanienne de la Soufrière Hills en 1997 et que le développement des textures était contrôlé par l'intervalle de temps entre la décompression et le début du refroidissement de la surface du claste. Les taux de décompression syn-explosifs estimés à partir des densités numériques de vésicules ($> 0,3\text{--}6,5 \text{ MPa s}^{-1}$), sont cohérents avec ceux prédits par les modélisations numériques.

Mots clés : Explosion volcanienne, Soufrière Hills, vésiculation du magma, dynamisme de conduit, distribution de taille de vésicules, microtomographie à rayons X, analyses d'images.

Textural studies in 2D and in 3D of the products from the 1997 Vulcanian explosions of Soufrière Hills Volcano, (Montserrat)

In 1997, Soufrière Hills Volcano experienced two periods of repetitive Vulcanian explosions, implying 88 explosions. Each of these explosions emptied the first 0.5-2 km of the conduit. The aim of this PhD was to constrain and to quantify the vesiculation processes that occurred during each of these explosions, by a textural analysis of the natural products. This study involved measurements by 2D image-analysis, 3D analysis by X-Ray computed microtomography, a detailed textural study of a series of breadcrust bombs, and chemical measurements of in particular matrix-glass water contents (using Raman microspectrometry) and chlorine contents.

Textural analysis in 2D led us to recognize several vesicle size populations. The smallest ones (smaller than few tens of microns) are syn-explosive, whereas most of the largest ones ($>$ several hundreds of μm) in pumices are pre-explosive. Nearly 15% of the largest vesicles in pumices, and all these large vesicles in the breadcrust bombs, formed by fracturation of amphibole phenocrysts. A population of intermediate vesicles, formed by the coalescence of the small ones, is visible in pumices. Syn-explosive nucleation took place heterogeneously on Fe-Ti oxides and vesicle growth occurred mainly by decompression. Coalescence affected all vesicles larger than few tens of microns.

X-ray computed microtomography allowed us to work with a 3D vision of the system. For the first time, vesicle and crystal size distributions were performed down to 2 μm , by combining several data sets. The observations made, and the parameters obtained, are consistent with those performed using 2D image-analysis. Moreover, 3D allowed us to constrain the coalescence process that occurred between neighbouring vesicles whatever their sizes.

Breadcrust bombs textural analysis showed that these samples underwent a vesiculation process that was intermediate between that of the dense samples from the degassed plug, and the pumices. Post-fragmentation vesiculation of the breadcrust bomb interior is the major mechanism leading to the fracturation of their dense rind, giving the breadcrusted aspect.

Chemical analyses showed a strong relationship between the matrix-glass water contents of the sample and its texture. Pumices can retain huge amount of water (until ~ 2.8 wt%) whereas dense samples and breadcrust bombs are more degassed. Measured chlorine contents are constant in all samples and could be explained by low distribution coefficient (~ 5) between the vapour phase and the melt. Between two successive explosions (~ 10 h), degassing occurred in partially open-system.

We demonstrated that syn-explosive vesiculation was important during each Vulcanian explosion of the Soufrière Hills Volcano in 1997 and that the development of the sample texture was controlled by the time interval between decompression and the onset of surface cooling. Syn-explosive decompression rates estimated using vesicle number densities (> 0.3 - 6.5 MPa s^{-1}) are consistent with those obtained by numerical modelling

Keywords : Vulcanian explosion, Soufrière Hills, vesiculation processes, conduit dynamics, vesicle size distribution, X-ray computed microtomography, image analysis.

The most exciting phrase to hear in science, the one that heralds new discoveries, is not 'Eureka!' (I found it!) but rather, 'hmm.... that's funny...'

La phrase la plus excitante à entendre en science, celle qui annonce de nouvelles découvertes, n'est pas « Eurêka » (j'ai trouvé !), mais plutôt « Tiens, c'est marrant... »

Isaac Asimov

Table des Matières

INTRODUCTION GENERALE.....	17
I. DE L'EXSOLUTION AU DEGAZAGE – REVUE DE LA LITTERATURE.....	21
I.1. Les volatils dans les magmas terrestres.....	22
I.1.1 Origine et importance.....	22
I.1.2 Composition chimique et abondance.....	23
I.1.3 Solubilité de l'eau et des autres espèces volatiles dans les magmas rhyolitiques.....	25
I.1.3.a Eau.....	25
I.1.3.b Chlore et fluor.....	27
I.1.4 Diffusivité des volatils dans les magmas rhyolitiques.....	28
I.1.4.a Eau.....	28
I.1.4.b Chlore et fluor.....	30
I.1.5 Impact de la présence d'eau, de Cl et de F sur la viscosité des magmas rhyolitiques.....	31
I.2. Caractéristiques texturales principales.....	32
I.2.1 Vésicularité, densité numérique et forme des vésicules.....	33
I.2.2 Perméabilité.....	34
I.3. Nucléation.....	34
I.3.1 Sursaturation en volatils.....	34
I.3.2 La nucléation homogène.....	35
I.3.2.a Relations thermodynamiques.....	35
I.3.2.b Apport de l'expérimentation.....	37
I.3.2.c Application de la théorie classique ; influence des différentes variables.....	39
I.3.3 La nucléation hétérogène.....	43
I.3.3.a Théorie.....	43
I.3.3.b Apport de l'expérimentation.....	46
I.3.4 Expérimentation et modélisation.....	47
I.3.5 Nucléation homogène / nucléation hétérogène : rappel des caractéristiques.....	50
I.4. Croissance.....	51
I.4.1 Principe.....	51
I.4.2 Les différents régimes de croissance.....	52
I.4.2.a Croissance limitée par la viscosité.....	54
I.4.2.b Croissance limitée par la diffusion.....	55
I.4.2.c Croissance limitée par la solubilité.....	56
I.4.3 Définition du régime de croissance subi par la bulle.....	56
I.4.4 Vérification expérimentale des lois de croissance.....	57
I.5. Mûrissement d'Ostwald, coalescence, perméabilité et dégazage.....	59
I.5.1 Mûrissement d'Ostwald et coalescence.....	59
I.5.1.a Principe.....	59
I.5.1.b Facteurs contrôlant la coalescence.....	61

I.5.2 Perméabilité.....	62
I.5.3 Dégazage.....	64
I.5.4 Fragmentation.....	65
I.6. Evolution des distributions de taille de bulles.....	66
I.6.1 Nucléation et croissance.....	67
I.6.1.a Distributions unimodales et polymodales.....	67
I.6.1.b Distributions exponentielles.....	68
I.6.1.c Distributions en loi de puissance (fractales).....	69
I.6.2 Passage d'un type de distribution à l'autre.....	70
I.6.3 Impact de la coalescence et du dégazage.....	71
I.7. Les vésicules dans les produits naturels.....	73
I.7.1 Observations de départ.....	73
I.7.2 Résultats et interprétations des analyses texturales.....	74
I.7.2.a Observations générales.....	74
I.7.2.b Plusieurs évènements de nucléation.....	75
I.7.2.c Nucléation, croissance et coalescence.....	76
I.7.2.d Données quantitatives extraites des distributions de taille de vésicules.....	80
I.8. Synthèse et ouverture sur la problématique de la thèse.....	82
 II. CONTEXTE GEOLOGIQUE DE L'ETUDE.....	 85
II.1. Contexte géologique régional.....	86
II.2. L'arc volcanique des Petites Antilles.....	87
II.3. L'île de Montserrat.....	88
II.3.1 Géographie et Histoire.....	88
II.3.2 Géologie générale de l'île de Montserrat.....	89
II.3.2.a Les différents centres volcaniques.....	89
II.3.2.b La pétrologie.....	91
II.4. Résumé du contexte géologique.....	92
II.5. L'éruption actuelle de la Soufrière Hills (depuis 1995).....	93
II.6. Les explosions Vulcaniennes de 1997.....	96
II.6.1 L'éruption vulcanienne.....	96
II.6.2 Chronologie des explosions vulcaniennes de 1997 à Montserrat.....	96
II.6.2.a 1ère série : les explosions du 4 au 12 août.....	97
II.6.2.b L'activité entre le 12 août et le 22 septembre.....	99
II.6.2.c 2ème série : les explosions du 22 septembre au 21 octobre.....	100
II.6.3 Déroulement d'une explosion vulcanienne moyenne de 1997.....	100
II.6.4 Les produits émis.....	103
II.6.4.a Les dépôts des écoulements pyroclastiques.....	103
II.6.4.b Les dépôts de retombées.....	105
II.6.5 Les volumes émis et la profondeur de vidange du conduit.....	105
II.6.6 Chimie des éléments majeurs et volatils : cristallinité et dégazage.....	106
II.6.6.a Chimie des éléments majeurs, cristallinité.....	106
II.6.6.b Chimie des éléments volatils, dégazage.....	108

II.6.6.c Stratigraphie pré-explosive du conduit.....	110
II.6.7 Dynamique de conduit durant les explosions vulcaniennes.....	112
II.6.7.a Mécanisme général.....	112
II.6.7.b Modélisation numérique du dynamisme de conduit.....	115
II.6.7.c Mise en pression du conduit et fragmentation explosive.....	116
II.6.7.d Mécanisme en profondeur.....	118
III. ANALYSE TEXTURALE EN DEUX DIMENSIONS DES PRODUITS	
DES EXPLOSIONS VULCANIENNES DE LA SOUFRIERE HILLS.....	119
III.1. Introduction.....	120
III.2. Pycnométrie à hélium.....	121
III.2.1 Principe et théorie de la méthode.....	121
III.2.2 Application :.....	122
III.3. Méthodologie utilisée pour la construction des distributions de vésicules et cristaux.....	123
III.3.1 Principe général et méthodologie préexistante.....	123
III.3.2 Sélection des échantillons.....	124
III.3.3 Nombre et types de grossissements et d'images utilisés.....	124
III.3.3.a Nombre et valeurs des grossissements, théorie.....	125
III.3.3.b Nombre d'images par grossissement, théorie.....	125
III.3.3.c Grossissements et images, pratique.....	126
III.3.4 Acquisition des images au Microscope Electronique à Balayage.....	127
III.3.5 Analyse des images, sélection des différents objets.....	127
III.3.6 Construction des distributions de tailles des cristaux et des vésicules.....	130
III.3.6.a Etape 1. Distributions à l'échelle d'une image.....	130
III.3.6.b Etape 2. Distributions à l'échelle d'un grossissement.....	132
III.3.6.c Etape 3. Distributions à l'échelle de l'échantillon.....	134
III.3.6.d Etape 4. Distributions en 3D : conversion 2D – 3D, stéréologie.....	137
III.3.7 Commentaires sur la méthodologie employée.....	140
III.3.7.a Efficacité de notre méthode.....	140
III.3.7.b Erreur associée aux données issues des distributions de tailles.....	141
III.3.7.c Implications de l'hypothèse de sphéricité pour les cristaux.....	142
III.3.7.d Influence du nombre de classes de tailles choisi.....	143
III.4. Nucléation, croissance et coalescence des vésicules durant les explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills à Montserrat.....	144
III.4.1 Résumé.....	144
III.4.2 Abstract.....	147
III.4.3 Introduction.....	148
III.4.4 The 1997 Vulcanian explosions of the Soufrière Hills Volcano.....	149
III.4.5 Field descriptions.....	150
III.4.5.a Methods.....	150
III.4.5.b Results.....	151
III.4.6 Pyroclast vesicularities.....	154
III.4.6.a Methods.....	154

III.4.6.b	<i>Results</i>	155
III.4.7	Microscopic vesicle textures.....	156
III.4.7.a	<i>Methods</i>	156
III.4.7.b	<i>Results</i>	156
III.4.8	Size distributions of vesicles and crystals.....	160
III.4.8.a	<i>Methods</i>	160
III.4.8.b	<i>Results</i>	161
III.4.9	Discussion.....	165
III.4.9.a	<i>Pre-explosion conduit stratigraphy</i>	165
III.4.9.b	<i>Origins of the vesicle populations</i>	166
III.4.9.c	<i>Amounts of pre-explosive and syn-explosive vesiculation</i>	168
III.4.9.d	<i>Timing of syn-explosive vesiculation</i>	169
III.4.9.e	<i>Mechanisms of syn-explosive vesiculation</i>	170
III.4.9.f	<i>Eruptive model</i>	174
III.4.10	Acknowledgments.....	179
III.4.11	Appendix: Size-distribution measurement of vesicles and crystals.....	179
III.4.12	References.....	181
III.4.13	Electronic Supplementary Data.....	184
III.5.	Conclusion	186
IV.	ANALYSE TEXTURALE EN TROIS DIMENSIONS	189
IV.1.	Introduction	190
IV.2.	Acquisition	191
IV.2.1	Principe général.....	191
IV.2.1.a	<i>Images IPROS</i>	193
IV.2.1.b	<i>Images ISTO</i>	193
IV.2.1.c	<i>Images SLS</i>	194
IV.2.2	Analyse qualitative.....	195
IV.2.3	Analyse quantitative.....	195
IV.2.3.a	<i>Images utilisées</i>	195
IV.2.3.b	<i>Reconstruction des parois : 3DMA-Rock</i>	196
IV.2.3.c	<i>Analyse des cristaux et des oxydes</i>	199
IV.2.3.d	<i>Construction des distributions de taille de cristaux, de vésicules et d'oxydes</i>	200
IV.2.3.e	<i>Construction des distributions de taille de constriction</i>	202
IV.2.3.f	<i>Distribution de la sphéricité</i>	202
IV.2.3.g	<i>Relations entre les parois reconstruites et les vésicules</i>	203
IV.3.	Analyse textural des produits des explosions vulcaniennes du volcan Soufrière Hills en 1997 (Montserrat) à l'aide de la microtomographie à rayons X	204
IV.3.1	Résumé.....	204
IV.3.2	Abstract.....	206
IV.3.3	Introduction.....	207
IV.3.4	Volcanic context and previous results.....	208
IV.3.5	Samples.....	209
IV.3.6	Methods.....	209

IV.3.7 Image analysis.....	211
IV.3.8 Results.....	216
IV.3.8.a Qualitative observations.....	216
IV.3.8.b Quantitative observations.....	219
IV.3.9 Discussion.....	223
IV.3.9.a Comparison with data from 2D image analysis.....	224
IV.3.9.b Origins of the vesicle populations.....	225
IV.3.9.c Mechanisms of syn-explosive vesiculation.....	226
IV.3.10 Conclusion.....	229
IV.3.11 Acknowledgments.....	230
IV.3.12 References.....	230
V. ETUDE TEXTURALE D'UNE SERIE DE BOMBES EN CROUTE DE PAIN.....	233
V.1. Introduction.....	234
V.2. Méthodes.....	235
V.2.1 Echantillonnage.....	235
V.2.2 Classement des bombes dans des groupes texturaux.....	236
V.2.3 Mesure des volumes des bombes et des fractures.....	239
V.2.4 Caractéristiques des fractures et de la bordure.....	239
V.2.5 Vésicularité, distribution de taille des vésicules.....	240
V.2.6 Teneurs en eau des verres résiduels.....	240
V.3. Résultats.....	241
V.3.1 Observations texturales.....	241
V.3.1.a Observations macroscopiques.....	241
V.3.1.b Observations microscopiques.....	242
V.3.2 Mesures texturales.....	247
V.3.2.a Fractures de surface.....	247
V.3.2.b Bordure des bombes.....	248
V.3.2.c Intérieur des bombes.....	249
V.4. Discussion:.....	250
V.4.1 Nature et origine de la vésicularité des bombes.....	250
V.4.2 Origine de la fracturation de la surface des bombes.....	251
V.4.3 Limite de l'expansion post-fragmentation.....	256
V.4.4 Association des bombes en croûte de pain avec les explosions vulcaniennes.....	257
V.5. Conclusion.....	258
VI. ANALYSES CHIMIQUES DES ELEMENTS MAJEURS ET VOLATILS.....	261
VI.1. Objectifs des analyses chimiques.....	262
VI.2. Méthodes.....	263
VI.2.1 Estimation de la cristallinité à l'aide des analyses chimiques.....	263
VI.2.1.a Principe de la méthode.....	263
VI.2.1.b Analyse des éléments majeurs dans les roches totales.....	265
VI.2.1.c Analyses des éléments majeurs dans les verres résiduels.....	265

VI.2.2 Analyse des éléments volatils dans les verres matriciels.....	266
VI.2.2.a Analyse de H ₂ O dans les verres résiduels.....	266
VI.2.2.b Analyse de Cl, F et S dans les verres résiduels.....	269
VI.3. Résultats.....	269
VI.3.1 Teneurs en éléments majeurs dans les roches totales.....	269
VI.3.2 Teneurs en éléments majeurs dans les verres matriciels.....	270
VI.3.3 Fractions cristallines dans les échantillons.....	270
VI.3.4 Teneurs en H ₂ O dans les verres matriciels.....	274
VI.3.5 Teneurs en Cl, F, S dans les verres résiduels.....	275
VI.4. Discussion.....	277
VI.4.1 Cristallisation des microlites.....	277
VI.4.2 Temps disponible pour le dégazage.....	277
VI.4.3 Temps de diffusion de l'eau et du chlore.....	278
VI.4.4 Modélisation du dégazage du chlore en fonction de la teneur en eau.....	280
VI.5. Conclusion.....	282
 SYNTHESE : VESICULATION ET DYNAMISME DE CONDUIT LORS DES EXPLOSIONS VULCANIENNES DU VOLCAN SOUFRIERE HILLS, 1997 (MONTSERRAT).....	 283
Avancés technologiques et méthodologiques.....	284
Profils de conduit pré-explosif.....	286
Principales conclusions de notre étude.....	287
Dynamiques de conduit possibles lors d'une explosion vulcanienne moyenne.....	290
Perspectives futures.....	293
 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	 295
 ANNEXE 1 : LE PYCNOMETRE A HELIUM.....	 315
 ANNEXE 2 : ERREURS ASSOCIEES AUX MESURES DE PYCNOMETRIE A HELIUM.....	 319

Introduction générale

Les éruptions volcaniques à forte explosivité (vulcaniennes à ultra-pliniennes), présentent les aléas et les risques volcaniques les plus importants à travers le monde. Certaines de ces éruptions ont causé la mort de dizaines de milliers de personnes, comme celles du Vésuve en Italie en 79 avant JC, (~30 000 victimes), celle du Krakatau en Indonésie en 1883 (~40 000 victimes), ou de la Montagne Pelée à la Martinique en 1902, (~30 000 victimes). Grâce aux progrès de la volcanologie depuis quelques dizaines d'années, il a récemment été possible de prédire quelques jours, voire quelques semaines à l'avance, le début d'une grande éruption explosive, et d'évacuer les populations potentiellement en danger, comme dans le cas du Mont S^t Helens aux Etats-Unis en 1980, du Pinatubo aux Philippines en 1991, ou plus récemment en 1995 à la Soufrière Hills de Montserrat, dans les Petites Antilles. Cependant, l'évacuation de milliers de personnes n'est pas aisée d'un point de vue logistique et a souvent un fort impact sur l'économie locale. De plus, si le début d'une éruption est maintenant le plus souvent anticipé, on a encore du mal à envisager son intensité et prévoir son évolution, c'est-à-dire, savoir si elle va avoir tendance à s'amplifier ou au contraire, à décliner, puis s'arrêter. L'étude de la dynamique de ce genre d'éruption est donc très importante.

L'explosivité des éruptions est essentiellement liée aux volatils présents dans le magma, et notamment à leur comportement lors de la remontée de celui-ci vers la surface. La dynamique des gaz va donc en grande partie contrôler l'intensité de l'éruption, et sa compréhension est, de ce fait, un des enjeux majeurs de la volcanologie à l'heure actuelle. Les paramètres les plus importants concernant ces volatils, sont leur composition chimique, leur abondance, la forme sous laquelle ils sont présents (dissous ou sous forme de vésicules) et leur capacité ou non à s'échapper de celui-ci lors d'une éruption, via notamment la création d'une perméabilité. En effet, la création de chenaux profondément dans le conduit, par la coalescence de vésicules, va permettre au gaz de s'échapper de façon passive lors de la remontée du magma, et donc, quand celui-ci arrivera en surface, il sera en grande partie dégazé et l'éruption sera faiblement explosive. En revanche, l'incapacité des volatils à s'extraire complètement du magma, va générer des surpressions importantes dans les vésicules qui les contiennent, et peut aboutir à une fragmentation explosive du magma et ainsi produire des éruptions beaucoup plus intenses.

Plusieurs approches sont possibles pour appréhender la dynamique de ces volatils lors d'une éruption : l'étude directe des produits émis comprenant principalement des missions de terrain et des analyses texturales (Klug et Cashman 1994 ; Klug et al. 2002, Wright et al. 2007 ; etc.), l'approche indirecte via l'expérimentation et les expériences de décompression notamment (Gardner et al. 1999, 2004 ; Mourtada-Bonnefoi et Laporte 1999, 2002, 2004 ; Cluzel et al. 2008 ; etc.) ou encore l'approche par la théorie et la modélisation numérique (Toramaru 1989, 1990, 1995, 2006 ; Melnik et Sparks 2002 ; Lensky et al. 2004 ; etc.). Toutefois, la compréhension du dynamisme interne d'un système volcanique, réside en grande partie sur l'abondance et la qualité des données naturelles disponibles ; que se soient les observations directes de l'éruption (photographies, vidéos...), les données pétrologiques, les enregistrements géophysiques, les analyses géochimiques, etc. Ces données sont en effet indispensables pour pouvoir replacer un échantillon dans le contexte d'une éruption, disposer de contraintes pour les expériences en laboratoire (température, pression, temps), ou encore diminuer le nombre d'inconnues et de variables dans les modélisations numériques. A ce titre, les explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills de Montserrat en 1997, sont très intéressantes, puisqu'elles ont été observées en détails et sont largement documentées, permettant de poser ce type de contraintes sur beaucoup d'aspects de l'éruption.

L'enjeu de ma thèse était de mieux cerner le mécanisme de vésiculation et de dégazage du magma, durant ces explosions vulcaniennes de 1997, c'est-à-dire, de réussir à quantifier la teneur en vésicules et d'en connaître leur nombre, leur taille, leur forme, leur histoire, afin de mieux comprendre le dynamisme des volatils dans le conduit lors de ces explosions. L'un des challenges de mon travail était aussi de réussir à introduire les résultats obtenus dans le modèle de conduit existant et de satisfaire toutes les contraintes issues des observations directes de ces explosions et qui peuvent difficilement être remises en question.

Ce manuscrit de thèse est divisé en six chapitres, reflétant les grandes étapes qui ont constitué mes trois années (et quelques mois) de doctorat :

Le **premier chapitre** présente une revue de la littérature s'intéressant à toutes les étapes de la vie d'une bulle de gaz dans un magma ; sa nucléation, sa croissance, son éventuelle coalescence et parfois sa résorption. Les principaux paramètres texturaux généralement utilisés pour caractériser les vésicules sont listés et détaillés. Les processus liés à la vésiculation sont abordés d'un point de vue théorique et expérimental dans un premier temps, puis les grands résultats issus des analyses texturales des roches naturelles sont

regroupés. La fin de ce chapitre insiste sur l'intérêt d'étudier en particuliers des éruptions telles que les explosions vulcaniennes de 1997 de la Soufrière Hills.

Le **second chapitre** dresse le contexte géologique de la thèse. Après une introduction du cadre géologique régional de l'île de Montserrat, l'éruption actuelle de la Soufrière Hills depuis 1995 et plus précisément les explosions vulcaniennes de 1997, sont détaillées. Enfin, les principales observations directes et indirectes de ces explosions sont rassemblées, afin de montrer l'état des connaissances concernant le conduit et sa dynamique lors de ces explosions vulcaniennes à Montserrat.

Le **troisième chapitre**, en partie sous forme d'un article soumis à Journal of Volcanology and Geothermal Research, dresse le bilan de l'analyse texturale que nous avons menée en deux dimensions sur les échantillons des explosions vulcaniennes de 1997. Après avoir introduit les méthodologies du pycnomètre à hélium et du calcul des distributions de taille des vésicules et cristaux, l'article en présente les résultats et les conclusions majeures.

Le **quatrième chapitre** présente l'étude texturale menée en trois dimensions, sur certains échantillons. Le principe physique de la microtomographie est expliqué après avoir souligné l'intérêt de cette méthode et montré son côté novateur, et les différents appareillages utilisés sont illustrés, de mêmes que les traitements effectués. Les résultats fournis par les analyses microtomographiques sont présentés et discutés sous forme d'un article qui sera soumis à Bulletin of Volcanology. Une comparaison avec la méthode d'analyse texturale en 2D est notamment effectuée, présentant les inconvénients et les intérêts des deux approches.

Le **cinquième chapitre** résume une étude menée sur une série de bombes en croûte de pain. Diverses mesures texturales concernant notamment la bordure dense, les fractures, la vésicularité, etc. ont été effectuées. Cette étude a notamment permis de préciser l'origine de la texture en croûte de pain, caractéristique des explosions vulcaniennes.

Le **sixième chapitre** expose les résultats des analyses chimiques effectuées principalement à la microsonde (éléments majeurs et volatils dans les verres résiduels) et au spectromètre Raman (teneur en H₂O du verre de trempe), sur une partie des échantillons. Ces analyses n'ont pas tenu toutes leurs promesses, notamment à cause de la difficulté à trouver des plages de verre résiduel assez larges pour effectuer les différentes analyses. Ces résultats préliminaires sont tout de même présentés, comparés avec les données existantes et discutés en termes d'implications sur le dynamisme du conduit.

Enfin, une synthèse reprend les apports méthodologiques et liste les résultats majeurs de cette thèse. Dans cette synthèse, nous avons aussi confronté ces résultats à différents modèles simples de conduit, envisageables pour expliquer les explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills de Montserrat en 1997.

I. De l'exsolution au dégazage – revue
de la littérature

I.1. Les volatils dans les magmas terrestres

I.1.1 Origine et importance

Les volatils sont les constituants du magma qui ont tendance à exister préférentiellement sous forme gazeuse ou de fluides supercritiques. Ils sont présents dans quasiment tous les magmas terrestres et sont émis dans l'atmosphère de façon passive (fumerolles, émanations du sol) ou active (éruptions volcaniques). Les volatils proviennent en partie de la fusion de roches lors de la formation du liquide silicaté, mais sont aussi gagnés ou perdus lors de la migration de celui-ci à travers la Terre. Ils affectent quasiment toutes les propriétés physiques et chimiques d'un magma, telles que sa température de fusion et le degré de cette fusion (Holloway et Burnham 1972 ; Sisson et Grove 1993), sa viscosité (Richet et al. 1996 ; Giordano et Dingwell 2003), ses propriétés thermodynamiques, ou encore, ce qui nous intéresse plus particulièrement dans cette étude, le style d'éruption que ce magma va engendrer (Anderson 1975 ; Sparks 1978 ; Tait et al. 1998 ; Johnson et al. 1994).

La teneur totale en volatils d'un magma inclut les volatils dissous dans le magma, mais aussi ceux sous forme fluide (souvent supercritiques), ou présents dans les phases cristallines. La teneur en volatils dissous diminue au cours de la remontée du magma vers la surface, en raison de la forte diminution des solubilités des deux espèces dominantes (H_2O et CO_2) avec la décroissance de pression. Cette réduction des solubilités peut conduire à l'exsolution des volatils, c'est-à-dire, à la nucléation puis à la croissance de bulles de gaz, qui en coalesçant et en formant des chenaux, peuvent permettre au gaz de s'échapper. Le dégazage est un phénomène très important, car outre le fait qu'il peut conduire à la formation de systèmes hydrothermaux ou de minerais, il contrôle la nature des éruptions volcaniques (Johnson et al. 1994).

Il n'est pas aisé d'obtenir les concentrations et compositions chimiques pré-éruptives des volatils dans les magmas. Une approche possible est l'analyse des inclusions vitreuses, qui sont de petites parcelles de magma piégées lors de la formation d'un phénocrystal, et rapidement trempées. Par sa rigidité, le minéral hôte permet aux volatils piégés dans l'inclusion de rester sous forme dissoute durant la remontée vers la surface. Les progrès dans les techniques de micro-analyses telles que les microsondes électronique et ionique, la spectroscopie infrarouge à Transformée de Fourier (FTIR) ou encore la microspectrométrie Raman, permettent d'analyser ces volatils de façon quantitative et ainsi d'en connaître la

nature et l'abondance (e.g. Sobolev et Chaussidon 1996 ; Wallace 2005 ; Le Voyer et al. 2010).

Cependant, il faut déterminer la possible présence d'une phase fluide libre, existante avant l'éruption, afin de déterminer le budget total en volatils. La pétrologie expérimentale permet d'aborder ce problème, car en faisant varier de façon indépendante et systématique des paramètres physiques tels que la pression ou la température, leur influence sur les compositions des minéraux formés et leurs stabilités peuvent être calibrées. A partir de la comparaison entre les assemblages minéralogiques naturels et ceux obtenus expérimentalement, les conditions dans lesquelles s'est formé le magma peuvent être obtenues, et ainsi la présence d'une phase fluide libre aux conditions de formation du magma peut être déterminée (e.g. Maaloe et Wyllie 1975 ; Whitney 1975 ; Naney et Swanson 1980).

Ces deux approches différentes ont permis d'estimer la composition et la teneur des volatils dissous dans les différents types de magmas, des plus basiques aux plus différenciés.

I.1.2 Composition chimique et abondance

L'eau est souvent le composant chimique majeur des gaz dissous dans les magmas, et a une influence directe et importante sur les propriétés de celui-ci. Elle est présente dans les magmas silicatés, à la fois sous forme moléculaire (H_2O) et sous forme de groupements hydroxyles ($-OH$), jusqu'à une teneur totale de plusieurs %pds (10 %pds dans certains magmas d'arc, Grove et al. 2005 ; ~8 %pds dans des magmas rhyolitiques, e.g. Clemens 1984 ; Anderson et al. 1989). La perte d' H_2O durant la remontée entraîne, entre autres, une augmentation de la viscosité et du taux de cristallisation (e.g. Shaw 1972 ; Sisson et Grove 1993 ; Richet et al. 1996 ; Métrich et Rutherford 1998 ; Giordano et Dingwell 2003 ; Grove et al. 2003 ; Pichavant et Macdonald 2007). L'eau affecte aussi énormément la densité du liquide silicaté par rapport aux autres composants du liquide (Ochs et Lange 1999). Une augmentation de 1 %pds d' H_2O dissoute aura, par exemple, un effet similaire sur la densité d'un magma basaltique qu'une élévation de ~400°C de la température, ou qu'une baisse de pression de ~500 MPa (Ochs et Lange 1999). De plus, la teneur en eau influence beaucoup la solubilité d'autres espèces volatiles telles que le soufre S (Freda et al. 2005) ou les halogènes (Aletti et al. 2007).

La deuxième espèce volatile la plus abondante dans les magmas est souvent le CO_2 , dont la concentration lorsqu'il est dissous dans le magma, peut dépasser 1 %pds (Allard et al. 1997 ; Wallace 2005) mais est souvent de l'ordre de quelques dizaines à milliers de ppm.

Cependant, il a été démontré que les magmas alcalins sous-saturés ou oxydés peuvent solubiliser de grandes quantités de CO₂ (Wyllie et Huang 1976 ; Pineau et Javoy 1983 ; Dixon et al. 1995 ; Botcharnikov et al. 2003). Dans les verres rhyolitiques, seule la forme moléculaire CO₂ a été détectée. Cette espèce est moins soluble que l'eau dans les liquides silicatés (e.g. Javoy et Pineau 1991 ; Dixon et al. 1995) et donc s'exsolve avant l'eau lors de la remontée.

Les SO₂ et H₂S sont, après les deux espèces précédentes, les gaz les plus abondamment émis par les volcans. Les émissions de SO₂ peuvent avoir un impact important sur le climat étant donné que ce gaz peut se transformer en aérosol d'acide sulfurique, bloquer les radiations solaires et ainsi contribuer à la destruction de l'ozone. Des études se sont aussi intéressées à ces émissions pour tenter de prévenir les éruptions, les émissions de SO₂ (mesurées par COSPEC ou DOAS) étant souvent corrélées avec l'intensité d'une éruption de volcan d'arc par exemple (Symonds et al. 1994 ; Edmonds et al. 2002 ; 2003).

Le chlore (Cl) et le fluor (F) se trouvent sous forme volatile, à des concentrations de 100 à 8500 ppm et 100 à 900 ppm respectivement dans les andésites de subduction (Aiuppa et al. 2009), type de magma émis à la Soufrière Hills. Ces deux éléments halogènes ont le plus couramment un comportement incompatible vis-à-vis de la plupart des phases cristallines, sauf avec l'amphibole et surtout l'apatite. De plus, ils sont moins sensibles que l'eau aux processus d'échanges chimiques liés par exemple à l'altération ou à l'hydratation post-dépôt. Le comportement volatil de l'eau au cours du dégazage contrôle donc directement celui de ces éléments halogènes (Métrich et Rutherford 1992 ; Webster 1997 ; Webster et al. 1999 ; Bureau et al. 2000 ; Bureau et Métrich 2003 ; Moretti et al. 2003 ; Carroll 2005). La mesure de F et Cl dans les inclusions et verres résiduels étant souvent plus facile et plus précise que celle de l'eau (surtout pour les magmas différenciés tels que les liquides rhyolitiques), ils sont souvent utilisés comme traceurs des processus dégazage.

Enfin, d'autres éléments tels que les halogènes restants (brome, iode, astate ; Baker et Balcone-Boissard 2008) ou les gaz nobles et l'azote (Carroll et Webster 1994), peuvent être présents en très faible quantité sous forme de volatils dans les magmas.

Toutes ces espèces sont dissoutes dans les magmas à forte profondeur, mais lors de la remontée du magma vers la surface, les solubilités des espèces volatiles (qui varient d'une espèce à l'autre) diminuent, saturant le magma en certaines phases, conduisant ensuite à une exsolution progressive des volatils (Dixon et al. 1991 ; Wallace et Anderson 1998 ; Blundy et

Cashman 2001 ; Sparks 2003). Cette exsolution se fait sous la forme d'une nucléation de bulles de gaz, dont l'expansion (croissance et éventuellement coalescence), influence la dynamique de remontée des magmas et constitue la force motrice des éruptions volcaniques (e.g. Anderson 1975 ; Sparks 1978, 2003 ; Tait et al. 1998 ; Pinel et Jaupart 2000).

I.1.3 Solubilité de l'eau et des autres espèces volatiles dans les magmas rhyolitiques

Les différences de solubilité des espèces volatiles en fonction de la pression, conduisent à des séquences d'exsolution qui varient d'un magma à l'autre (Holloway et Blank 1994 ; Giggenbach 1996). Le plus souvent, le CO₂ est la première espèce à s'exsolver, parfois à des profondeurs mantelliques. L'eau, le soufre et les halogènes, dont les pressions initiales d'exsolution sont plus faibles et fortement dépendantes de la nature et de l'évolution chimique du liquide, s'exsolvent ensuite. La séquence d'exsolution influence à la fois le degré de cristallisation du magma, la nature des minéraux formés et l'état rédox du liquide silicaté, changeant donc la solubilité des espèces volatiles encore dissoutes (Moretti et Papale 2004).

I.1.3.a Eau

L'eau étant la phase volatile la plus importante en termes de volume et dont les propriétés physiques et chimiques changent le plus celles du magma, sa solubilité est étudiée depuis longtemps. Ces études sont très nombreuses dans les liquides rhyolitiques (e.g. Goranson 1931 ; Burnham et Jahns 1962 ; Dingwell et al. 1984, 1997 ; Holtz et al. 1992 ; Gardner et al. 1999 ; Zhang 1999 ; Mangan et Sisson 2000 ; Tamic et al. 2001, Liu et al. 2005 ; etc.). La quantité maximale d'eau que l'on peut dissoudre dans un liquide rhyolitique diminue avec la diminution de pression et avec l'augmentation de température, et dépend aussi de la composition chimique du magma. De plus, cette solubilité est réduite en présence de CO₂ (Liu et al. 2005). Il existe de nombreuses équations donnant la valeur de solubilité de l'eau en fonction de la pression et de la température notamment, chacune dérivant d'études expérimentales comme celles citées précédemment.

Nous avons utilisé le modèle de Liu et al. (2005) dans nos différents calculs, car ce modèle a l'avantage de prendre en compte à la fois les données existantes pour les pressions entre 50 et 200 MPa, mais aussi des données réalisées à plus basses pressions (0,098 à 25 MPa) sur des haplogranites synthétiques et des rhyolites naturelles de compositions proches de celles étudiées dans cette thèse. L'applicabilité de ce modèle au cas de la Soufrière Hills a de plus été confirmée par Burgisser et al. (soumis). Dans le modèle de Liu et al. (2005), la solubilité de l'eau pure est donnée par :

$$H_2O_t = \frac{(354,94P^{0,5} + 9,623P - 1,5223P^{1,5})}{T} + 0,0012439P^{1,5} \quad [1]$$

Où H_2O_t (%pds) est la solubilité de l'eau pure, T (K) est la température et P (MPa) est la pression.

La solubilité de l'eau en fonction de la pression a été calculée avec le modèle de Liu et al. (2005) pour la gamme de pression et une température qui nous intéressent dans cette étude (0,1-140 MPa et 850°C). La Figure 1a montre bien que la solubilité diminue depuis ~4,5 %pds à ~130 MPa jusqu'à 0,1 %pds à 0,1 MPa. La Figure 1b tirée de Liu et al. (2005) présente une comparaison entre différents modèles de solubilités de l'eau pure pour une température de 800°C. Ces modèles sont assez proches dans la gamme de pressions qui nous concerne. Ces deux graphiques montrent pourquoi, lors de la remontée du magma et donc de sa décompression, l'eau a tendance à passer sous forme volatile via la nucléation et la croissance de bulles de gaz.

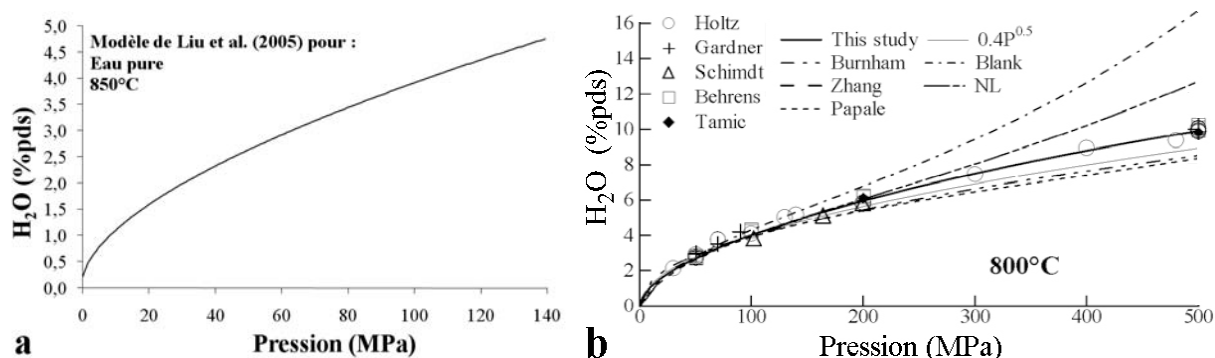


Figure 1. a) Solubilité de l'eau pure calculée pour une température de 850°C et pour une gamme de pression de 0,1 à 140 MPa à l'aide du modèle de solubilité de Liu et al. (2005). b) Figure de Liu et al. (2005) comparant leur modèle de solubilité à d'autres modèles concernant l'eau pure et une température de 800°C. Les données expérimentales utilisées proviennent de Holtz et al. (1992, 1995) ; Gardner et al. (1999) ; Behrens et Jantos (2001) ; Schmidt et al. (1999) et Tamic et al. (2001). Les modèles de solubilité sont issus de Liu et al. (2005, « This study ») ; Burnham (1975, 1994) ; Zhang (1999) ; Papale (1997, 1999) ; Blank et al. (1993) et Newman et Lowenstern (2002).

En raison de leur faible solubilité et donc de leur dégazage précoce, le CO_2 et le SO_2 sont souvent en quantité peu élevée dans les verres rhyolitiques. Leur faible concentration dans les dépôts des explosions volcaniques étudiés durant cette thèse explique pourquoi leur comportement n'est pas détaillé ici.

1.1.3.b Chlore et fluor

A haute pression (> 100 MPa), le Cl se spécifie en NaCl ou KCl comme le montrent les études expérimentales ou d'inclusions fluides (Burnham 1975 ; Anderko et Pitzer 1993 ; Liebscher 2007 ; Driesner et Heinrich 2007). A plus basse pression, le chlore va se concentrer dans la phase fluide lorsque celle-ci existe (coefficient de distribution $D_{Cl}^{v/m} > 1$), sous forme HCl notamment (Giggenbach 1996 ; Allard et al. 2005 ; Oppenheimer et al. 2006 ; Burton et al. 2007a, b). Pour un magma dans une gamme de pressions entre 25 et 250 MPa et des températures de 860-890°C comme c'est approximativement le cas à la Soufrière Hills, Signorelli et Carroll (2001) ont montré que la limite de solubilité du chlore était de 4 800 à 6 800 ppm, en présence d'une phase aqueuse.

En plus de sa forte dépendance à la pression, la valeur du coefficient de distribution du chlore entre la vapeur et le liquide rhyolitique ($D_{Cl}^{v/m}$) dépend aussi de la température, de la composition du liquide silicaté (et notamment du rapport Na+K/Al) ainsi que des teneurs en H₂O et en Cl (e.g. Webster et Holloway 1988 ; Shinohara 1994 ; Candela et Piccoli 1995 ; Webster 1997 ; Carroll 2005). La valeur de $D_{Cl}^{v/m}$ croît avec la diminution de température, et avec l'augmentation de la pression ou de la teneur en Cl. La dépendance de $D_{Cl}^{v/m}$ à la pression est importante, cependant très peu de données expérimentales existent pour des pressions < 50 MPa (Balcone-Boissard et al. 2010). Pour des magmas différenciés comme celui de la Soufrière Hills, des $D_{Cl}^{v/m}$ de 5 à 30 (Humphreys et al. 2009), $10 \pm 1,5$ (Villemant et Boudon 1999), 5 à 60 (Métrich et Rutherford 1992 ; Webster 1992 ; Shinohara et al. 1989), < 50 (Edmonds et al. 2001), 100-200 (Webster et al. 1999) ou 250-300 (Edmonds et al. 2002) ont été proposés. De plus, le comportement du chlore lors du dégazage est aussi une fonction de la cristallisation, celui-ci pouvant être séquestré par la cristallisation d'apatite ou de minéraux silicatés hydratés (Aiuppa et al. 2009)

Le fluor est très soluble dans les liquides silicatés (Mysen et al. 2004; Gabitov et al. 2005; Kiprianov 2006; Kiprianov et Karpukhina 2006; Dolejš et Baker 2007a, b) et reste ainsi souvent piégé dans le liquide silicaté lors de la remontée de celui-ci vers la surface, étant parfois incorporé lors de la cristallisation d'amphibole ou d'apatite.

I.1.4 Diffusivité des volatils dans les magmas rhyolitiques

I.1.4.a Eau

La diffusivité de l'eau dans les liquides rhyolitiques est étudiée depuis les années 1970 avec les premières expériences de diffusion de Shaw (1974). La revue de Zhang et al. (2007) donne un bon aperçu de la longue l'histoire de l'étude de la diffusivité de l'eau dans les magmas et le lecteur est renvoyé vers cet article pour une revue plus approfondie de cette littérature.

La diffusivité de l'eau dans un liquide rhyolitique augmente avec l'augmentation de pression, de température et de concentration en eau dans le liquide. La dépendance de la diffusivité de l'eau à la concentration en eau augmente avec l'augmentation de pression (Zhang et Behrens 2000). Le modèle le plus complet donnant la diffusivité de l'eau dans un liquide rhyolitique et qui couvre les gammes de pression, températures et teneurs en eau qui nous intéressent dans ce manuscrit (0,1 à ~130 MPa ; 650-850°C ; 0 à ~4,5 %pds) est celui de Zhang et Behrens (2000). Ce modèle établi à partir de données expérimentales couvre une gamme de températures comprises entre 400 et 1200°C, prend en compte des pressions de 0,1 à 810 MPa et des teneurs en eau variant de 0,1 à 7,7 %pds (Zhang et Behrens 2000 ; Zhang et al. 2007). La diffusivité de l'eau dans ce modèle est donnée par :

$$D_{ZB2000} = 10^{-12} X \exp(m) \left\{ 1 + \exp \left[56 + m + X \left(-34,1 + \frac{44620}{T} + \frac{57,3P}{T} \right) - \sqrt{X} \left(0,091 + \frac{4,77 \times 10^6}{T^2} \right) \right] \right\} \quad [2]$$

Où D_{ZB2000} ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$) est la diffusivité de l'eau, $m = -20,79 - 5030/T - 1,4P/T$, P (MPa) est la pression à laquelle se trouve le magma, T (K) est sa température et X est la fraction molaire d'eau présente dans le liquide sur la base d'un seul oxygène avec $X = 0,0167 C_{H_2O}$ où C_{H_2O} (%pds) qui est la concentration initiale d'eau dans le liquide silicaté. Comme nous l'avons vu précédemment C_{H_2O} dépend de P et T (Equation [1]).

La diffusivité de l'eau varie aussi avec la teneur en SiO_2 du liquide comme l'ont montré Behrens et al. (2004) pour des magmas dacitiques et andésitiques et pour une concentration de 1 %pds d'eau dans le liquide :

$$D_{BZX2004} = 10^{(-0,757-0,08686C_s)+\frac{-14785+131,7C_s}{T}+\frac{P(3,079-0,049C_s)}{T}} \quad [3]$$

Où $D_{BZX2004}$ est la diffusivité de l'eau pour une concentration de 1 %pds d'eau dans le liquide avec C_s (%pds) qui est la concentration du liquide en SiO_2 et T (K) est la température.

Toramaru (2006) utilise dans son modèle de calcul du taux de décompression (utilisé plus tard dans ce manuscrit) une formule permettant d'obtenir la diffusivité de l'eau en fonction de la température, de la pression, de la teneur en eau mais aussi de la teneur en SiO_2 du liquide rhyolitique, en combinant les modèles de Zhang et Behrens (2000) et de Behrens et al. (2004). Puisque nous avons utilisé ce modèle de calcul de taux de décompression (Chapitres 3 et 4) et afin d'être cohérents, c'est cette équation que nous avons utilisée dans tout ce manuscrit lorsque nous avons dû calculer la diffusivité de l'eau :

$$D_{H_2O} = D_{BZX2004}(P(C_{H_2O}), T, C_s) \times \frac{D_{ZB2000}(C_{H_2O}, T, P(C_{H_2O}))}{D_{ZB2000}(1\%pds, T, P(C_{H_2O}))} \quad [4]$$

Où D_{H_2O} ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$) est la diffusivité de l'eau, $D_{BZX2004}$ est la diffusivité pour 1%pds d'eau calculée à l'aide du modèle de Behrens et al. (2004) en fonction de T , P et C_s , D_{ZB2000} est la diffusivité calculée à l'aide du modèle de Zhang et Behrens (2000) en fonction de T , P et C_{H_2O} , et D_{ZB2000} (1%pds) est la diffusivité calculée à l'aide du modèle de Zhang et Behrens (2000) en fonction de T , P et pour 1 %pds d'eau.

Dans notre étude, la teneur en silice varie très peu (~78 %pds ; cf. chapitre 6 ; Burgisser et al. soumis), de même que la température (~850°C, Devine et al. 2003). Les valeurs de diffusivité calculées pour nos verres vont donc varier essentiellement en raison des changements de pression et de concentration en eau dans le liquide (qui sont liées). Nous avons calculé la variation de diffusivité de l'eau en fonction de la pression pour des liquides rhyolitiques contenant 78 %pds de SiO_2 et une température de 850°C. La concentration en eau dans ce magma est calculée à l'aide de l'équation [1]. La Figure 2 montre que la diffusivité de l'eau varie environ d'un ordre de grandeur entre 140 MPa et 0,1 MPa et est de l'ordre de 10^{-13} à $10^{-12} \text{ m}^2 \text{s}^{-1}$.

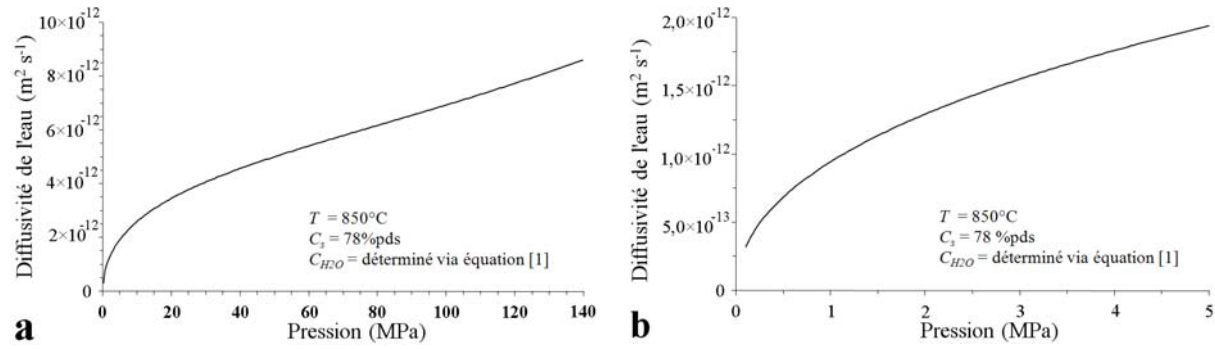


Figure 2. Variation de la diffusivité en eau des échantillons des explosions volcaniennes de la Soufrière Hills en 1997, en considérant une température constante de 850°C (Devine et al. 2003), une teneur en SiO_2 de 78 %pds et une teneur en eau contrôlée par la loi de solubilité de Liu et al. (2005 ; cf. Eq. [1]). a) sur l'ensemble du conduit de la Soufrière Hills jusqu'à 140 MPa. b) zoom aux faibles pressions (1 à 5 MPa).

1.1.4.b Chlore et fluor

Les études existantes sur la diffusion des halogènes dans les liquides silicatés montrent que leur diffusion a un comportement du type arrhénien aux températures magmatiques (Baker et Balcone-Boissard 2009). Pour le chlore, les expériences de diffusion de Bai et Koster van Groos (1994) dans un liquide haplogranitique et une obsidienne anhydres, à des températures de 850°C à 1400°C et des pressions de 1 atm à 460 MPa, montrent que la diffusivité est définie par :

$$D_{Cl} = 3,16 \times 10^{-9} \exp \frac{-86\,190}{RT} \quad [5]$$

Avec R qui est la constante des gaz parfaits ($8,3143 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$) et T (K) qui est la température.

En présence d'eau et dans un liquide granitique à $650\text{--}900^\circ\text{C}$ et 200 MPa, Bai et Koster van Groos (1994) ont montré que la diffusivité était définie par :

$$D_{Cl} = 6,46 \times 10^{-7} \exp \frac{-110\,900}{RT} \quad [6]$$

Pour une température de 850°C (cas de notre étude, Devine et al. 2003), la diffusivité du Cl varie donc entre $3,1 \times 10^{-13} \text{ m}^2 \text{s}^{-1}$ et $4,5 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{s}^{-1}$.

Pour le fluor, le comportement arrhénien de la diffusivité décrit par les expériences de Dingwell et Scarfe (1985) sur un liquide albitique entre $1\,200$ et $1\,400^\circ\text{C}$ et à 1 atm, montrent que la diffusivité du fluor dans nos conditions d'études ($\sim 850^\circ\text{C}$) est très faible, de l'ordre de $4,3 \times 10^{-15} \text{ m}^2 \text{s}^{-1}$.

I.1.5 Impact de la présence d'eau, de Cl et de F sur la viscosité des magmas rhyolitiques

La viscosité a très vite été reconnue comme étant l'une des caractéristiques physiques qui différencie le plus les magmas rhyolitiques des magmas plus basiques (Bowen 1934). Elle a une importance déterminante dans l'explosivité d'une éruption, notamment dans le contrôle du dégazage (croissance et coalescence des bulles de gaz, e.g. Lensky et al. 2004) et de la fragmentation (e.g. Thomas et al. 1994) et fait l'objet d'études depuis longtemps (e.g. Saucier 1952 ; Sabatier 1956 ; etc.). Les modèles permettant de calculer la viscosité théorique d'un liquide rhyolitique hydraté existent aussi depuis plusieurs décennies (Bottinga et Weill 1972 ; Shaw 1972 ; Hess et Dingwell 1996). La viscosité d'un liquide silicaté dépend de la température à laquelle il se trouve et de sa teneur en H₂O. Le modèle utilisé dans cette thèse est le celui de Hess et Dingwell (1996), qui lie la viscosité η (Pa s) à la température T (K) et la concentration en eau C_{H_2O} (%pds) du liquide rhyolitique par la relation suivante :

$$\log \eta = \frac{[-3,545 + 0,833 \ln(C_{H_2O})] + [9601 - 2368 \ln(C_{H_2O})]}{\{T - [195,7 + 32,25 \ln(C_{H_2O})]\}} \quad [7]$$

Nous avons calculé la viscosité de liquides rhyolitiques dont la température (600 à 900°C) et la teneur en eau (0,5 à 4,5 %pds) correspondent aux gammes observées dans nos échantillons (cf. Chapitre 2 ; Barclay et al. 1998 ; Devine et al. 2003 ; Burgisser et al. soumis). Les résultats présentés dans la Figure 3 montrent que la viscosité est très sensible à ces deux paramètres. Pour un liquide rhyolitique à une température de 850°C (température du magma dans le conduit à Montserrat estimée par Devine et al. 2003), la viscosité couvre plus de quatre ordres de grandeur selon la teneur en eau du magma ($\sim 4 \times 10^4$ Pa s avec 4,5 %pds d'eau et plus de 3×10^8 Pa s avec 0,25 %pds d'eau). Lors de la remontée et donc de la décompression du magma, la perte d'eau engendrée par son exsolution et la formation de bulles de gaz va donc fortement augmenter la viscosité (Figure 3). Inversement, un magma ayant une teneur en eau donnée (1 %pds par exemple) et subissant une baisse de température brutale (e.g. baisse de 200°C ; mise en contact avec l'atmosphère) va voir sa viscosité augmenter de pratiquement trois ordres de grandeur ($6,4 \times 10^6$ Pa s à 850°C contre $4,9 \times 10^9$ Pa s à 650°C).

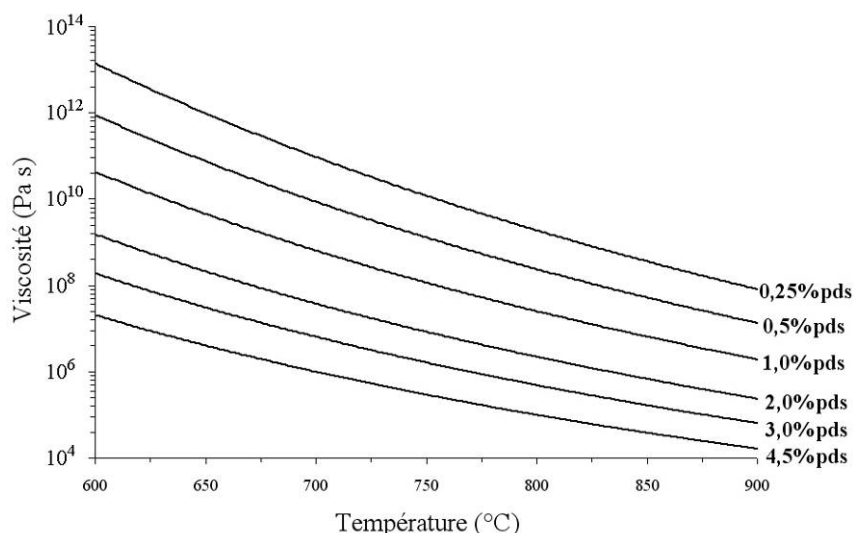


Figure 3. Relation entre la température (T), la concentration en eau (C_{H_2O}) et la viscosité (η) d'un liquide silicaté rhyolitique.

La présence de Cl et de F dans les magmas rhyolitiques semble avoir une influence sur la viscosité du magma même si leur impact reste mal connu (voir la revue de la littérature d'Aiuppa et al. 2009 sur ce sujet). Cependant, l'impact de la concentration en chlore et fluor sur la viscosité est négligeable par rapport à celui de la teneur en eau.

I.2. Caractéristiques texturales principales

Dans les paragraphes suivants, certaines caractéristiques texturales liées à la vésiculation d'un magma et facilement mesurables sont d'abord définies car elles permettent de faire le lien entre toutes les approches : la théorie, l'expérimentation, la modélisation numérique et les études texturales des produits naturels. Ensuite, l'influence de chaque processus (nucléation, croissance, coalescence, dégazage, fragmentation) sur ces caractéristiques est détaillée à l'aide de la littérature disponible concernant les données expérimentales et théoriques. Enfin, les résultats de certaines études texturales d'échantillons naturels sont rassemblés, et les diverses interprétations qui en sont faites sont synthétisées. Afin de pouvoir appréhender au mieux le phénomène de vésiculation d'un magma, certaines caractéristiques texturales sont définies ci-dessous et seront utilisées tout au long de ce manuscrit. Elles ont pour vocation d'être quantifiées et comparées entre toutes les approches, leur variation permettant de caractériser l'intervention des processus régissant la vésiculation d'un magma. D'un point de vue nomenclature, le terme « vésicule » est utilisé dans ce manuscrit pour désigner le résultat final (échantillon trempé) de l'évolution d'une « bulle ».

I.2.1 Vésicularité, densité numérique et forme des vésicules

La vésicularité (ou porosité) d'un magma ou d'une roche, est sa fraction volumique de phase gazeuse, exprimée le plus souvent en pourcentage volumique. Elle peut être constituée de vésicules isolées (vésicularité dite fermée) ou/et d'un réseau de vésicules connectées avec l'extérieur de l'échantillon (vésicularité ouverte). La vésicularité peut être facilement obtenue via plusieurs méthodes, parmi lesquelles la pycnométrie (à hélium, à eau, ou autre gaz) donne souvent les résultats les plus précis (e.g. Formenti et Druitt 2003 ; Platz et al. 2007). De plus, cette méthode permet de différencier la porosité ouverte de la porosité fermée. Cette technique est détaillée dans le Chapitre 3 de ce manuscrit et l'appareillage dans l'Annexe 1. La porosité peut aussi être obtenue par analyses d'images en 2D et en 3D (Giachetti et al. 2010 ; Degruyter et al. 2009 ; Giachetti et al. à soumettre) mais les erreurs associées à ces techniques sont souvent plus importantes que l'erreur donnée par la pycnométrie à hélium.

La valeur de la porosité est directement liée au nombre et au volume individuel des vésicules. Elle est, pour cette raison, souvent reportée en fonction de la taille des vésicules (exprimée sous forme de classes de tailles), afin de rendre compte de l'existence éventuelle de différentes populations de vésicules en termes de tailles. Cette distribution du volume en fonction de la taille des vésicules implique une étude texturale de l'échantillon qui est souvent réalisée par analyse d'images en deux dimensions (e.g. Toramaru 1990 ; Mangan et al. 1993 ; Klug et al. 1994 ; Klug et Cashman 1996 ; Adams et al. 2006 ; Shea et al. 2010). Cette méthodologie, appliquée sur nos échantillons, est détaillée dans le Chapitre 3 de cette thèse.

La densité numérique de vésicules (N_v) est le nombre de vésicules par unité de volume, et est souvent exprimée par unité de volume de verre uniquement (i.e. corrigée de l'abondance des cristaux et des vésicules). C'est un paramètre mesurable via l'analyse d'images en 2D des échantillons et qui permet de faire le lien entre toutes les approches. Comme pour la vésicularité, elle est le plus souvent exprimée en fonction de la taille des vésicules, ce qui permet en théorie de retracer les processus de nucléation, croissance, et coalescence des bulles. La densité numérique obtenue par unité de surface via l'analyse en 2D, est convertie en densité par unité de volume via des calculs stéréologiques (e.g. Cheng et Lemlich 1983 ; Sahagian et Proussevitch 1998). Récemment la microtomographie à rayons X a permis d'obtenir directement la densité numérique en 3D (Polacci et al. 2008 ; Degruyter et al. 2009 ; Giachetti et al. à soumettre). Cette méthode, utilisée dans notre étude, est détaillée dans le Chapitre 4.

La forme des vésicules est aussi déterminée par analyse d'images mais reste cependant assez peu utilisée (Shea et al. 2010). Manipulé avec précaution, ce paramètre peut donner des informations sur les processus engendrant une déformation des vésicules (coalescence notamment). La microtomographie est un atout non négligeable pour quantifier ce paramètre, puisqu'elle permet d'identifier une orientation préférentielle des vésicules en 3D par exemple, ou de visualiser des chenaux formés par la coalescence de bulles (Polacci et al. 2008 ; Degruyter et al. 2009).

I.2.2 Perméabilité

La perméabilité d'une roche, qui est mesurée par perméamétrie (Rust et Cashman 2004 ; Wright et al 2007 ; Platz et al. 2007), est la capacité qu'a l'échantillon à laisser passer un gaz. Elle reflète plus ou moins l'état de connectivité des vésicules. Lors de la mesure, un gaz est injecté dans un cylindre découpé dans l'échantillon, via un tuyau, et par augmentations successives du débit du gaz, et à l'aide d'équations issues de la loi de Darcy notamment, il est possible de déterminer la perméabilité.

I.3. Nucléation

I.3.1 Sursaturation en volatils

Considérons un magma hydraté contenant de l'eau comme seule phase volatile, et dont la pression de saturation en eau est égale à P_{SAT} . Dans un cas idéal, et en raison des fluctuations locales de la concentration en eau, un embryon (nucléus) constitué de molécules d'eau peut se former à tout moment dans ce liquide, dès lors que la pression du magma (P_L) est plus faible que sa pression de saturation en eau (P_{SAT}). Ce processus de nucléation est un agencement des atomes de la phase volatile à l'échelle microscopique, créant un embryon suffisamment volumineux pour qu'il soit stable thermodynamiquement (Debenedetti 1996 ; Lasaga 1998). Cependant, il est très rare que la nucléation des bulles commence exactement à la pression de saturation (surtout dans les systèmes riches en SiO_2), en raison de l'excès d'énergie associé à la création des interfaces liquide-bulle, qui oblige la nucléation à débiter à une pression plus faible que P_{SAT} . Cette différence entre la pression de saturation théorique (P_{SAT}) et la pression à laquelle débute réellement la nucléation (P_N), est appelée pression de sursaturation en volatils (ΔP_N , Figure 4).

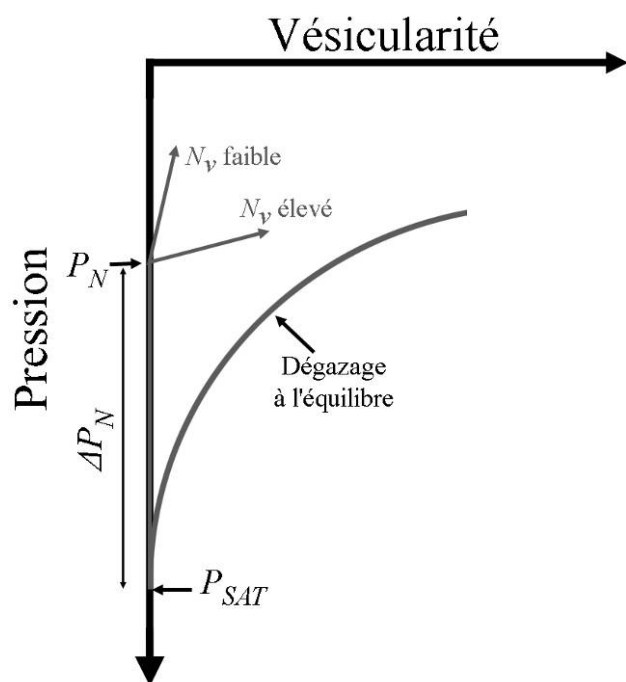


Figure 4. Relation schématique entre la pression et la vésicularité, lors de la remontée de liquides silicatés hydratés. Pour un cas idéal à l'équilibre, la nucléation des bulles se produit à P_{SAT} , et la vésicularité suit la courbe de dégazage à l'équilibre. Pour un cas hors équilibre, la nucléation sensée se produire à P_{SAT} , se produit en réalité à P_N , créant une pression de sursaturation en volatils égale à ΔP_N . Puis la vésicularité augmente en fonction de la densité numérique de vésicules, selon un trajet se rapprochant du cas à l'équilibre pour un N_v (densité numérique de vésicules) élevé ou restant faible dans le cas d'un N_v faible, conduisant à une augmentation de la sursaturation avec la décompression du magma (cf. texte).

Lorsque le processus de formation d'une bulle de gaz se produit dans un liquide silicaté où il n'y a pas de site favorable à la formation de germes, la nucléation est dite homogène. Si au contraire, la naissance de ces bulles se fait sur un support qui favorise la formation des embryons (cristaux par exemple), la nucléation est dite hétérogène. L'analyse thermodynamique de la nucléation a permis l'établissement d'équations qui relient les paramètres contrôlant ce processus, et qui permettent de calculer la pression de nucléation notamment. Les données expérimentales ont permis de fixer certaines variables du système.

I.3.2 La nucléation homogène

I.3.2.a Relations thermodynamiques

La théorie classique de la nucléation homogène, c'est-à-dire le processus physique de la nucléation d'une bulle dans un liquide homogène, s'est établie depuis les années 1950 (Fisher 1948 ; Hirth et al. 1970), et la nucléation de bulles de gaz dans un liquide silicaté a été discutée dès les années 1970 (McBurney et Murase 1970 ; Bennett 1974 ; Sparks 1978).

La genèse d'un amas de molécules d'eau va entraîner une variation d'énergie libre du système liquide-bulle (ΔF), qui sera égale à la somme de l'énergie interfaciale et de l'énergie de sursaturation, diminuée de l'énergie mécanique de vaporisation (Hirth et al. 1970). Il existe une taille critique pour laquelle la variation d'énergie libre atteint un maximum ΔF^* qui est donné par (Hurwitz et Navon 1994) :

$$\Delta F^* = \frac{16\pi\sigma_{LG}^3}{3(P_B^* - P_L)^2} \quad [8]$$

Où σ_{LG} est la tension de surface entre le liquide et le gaz, P_B^* est la pression à l'intérieur du nucléus critique et P_L est la pression à laquelle se trouve le magma. L'embryon atteignant cette taille critique peut ensuite croître de façon spontanée, car l'ajout d'une molécule d'eau résulte en une diminution de l'énergie du système liquide-bulle. La relation qui lie la taille à la pression de l'embryon critique est :

$$r^* = \frac{2\sigma_{LG}}{(P_B^* - P_L)} \quad [9]$$

La taille du rayon critique décroît donc avec la diminution de P_L .

Le taux de nucléation J (i.e. le nombre de germes $> r^*$, en $m^{-3} s^{-1}$) augmente avec la diminution de P_L (Hirth et al. 1970 ; Debenedetti 1996 ; Navon et Lyakhovsky 1998) selon la relation :

$$J = J_0 e^{-\frac{16\pi\sigma_{LG}^3}{3kT(P_B^* - P_L)^2}} \quad [10]$$

Où k ($1,3805 \times 10^{-23} J K^{-1}$) est la constante de Boltzmann et T (K) est la température du magma. Le paramètre pré-exponentiel J_0 ($m^{-3} s^{-1}$) est donné par (Hurwitz et Navon 1994) :

$$J_0 = \frac{2\Omega_L n_0^2 D_{H_2O}}{a_0} \sqrt{\frac{\sigma_{LG}}{kT}} \quad [11]$$

Où Ω_L ($2 \times 10^{-29} m^{-3}$; Holz et al. 1995) est le volume de molécules d'eau présentes dans le liquide, n_0 est le nombre de molécules d'eau par unité de volume, a_0 donné par $a_0 \approx n_0^{-1/3}$ est la distance minimale entre deux molécules voisines, et D_{H_2O} est la valeur de la diffusivité de l'eau dans le liquide.

Soit X la fraction massique totale d'eau dans le liquide (égale à la valeur de solubilité à P_{SAT}), et X_M la fraction massique d'eau moléculaire seulement, nous avons :

$$n_0 = N_A X_M \frac{\rho_{liq}}{M} \quad [12]$$

Où N_A ($6,02 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$) est le nombre d'Avogadro, ρ_{liq} est la masse volumique du liquide, et M est la masse molaire de l'eau ($0,018 \text{ kg mol}^{-1}$).

Dans la plupart des études (Sparks 1978 ; Hurwitz et Navon 1994 ; Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004), P_B^* était considérée comme constante et par conséquent, la relation $P_B^* \approx P_{SAT}$ était utilisée (valable pour une nucléation qui se produit proche de P_{SAT} , quand la tension de surface est très faible). Cependant, pour une tension de surface plus élevée et considérant que les bulles formées lors de la remontée sont constituées de gaz parfaits, Cluzel et al. (2008) ont démontré que les deux pressions dans un système rhyolite- H_2O (proche du système étudié durant cette thèse) étaient reliées par l'équation suivante :

$$P_B^* = P_{SAT} e^{\frac{\Omega_L}{kT}(P_L - P_{SAT})} \quad [13]$$

En calculant le taux de nucléation (J) en fonction de la diminution de la pression à laquelle se trouve le magma (P_L), ces différentes équations permettent de calculer la pression de nucléation (P_N) mais aussi la densité numérique de bulles (N_v). Cependant, les équations [9] à [13] font intervenir des variables telles que la diffusivité de l'eau ou encore la tension de surface liquide / gaz, qui ont besoin d'être déterminées expérimentalement.

1.3.2.b Apport de l'expérimentation

La remontée vers la surface d'un liquide silicaté hydraté est simulée expérimentalement, par des expériences de décompression réalisées en autoclave le plus souvent (e.g. Mourtada-Bonnefoi et Laporte 1999, 2002, 2004 ; Gardner et Denis 2004). Un verre silicaté saturé en eau, placé dans une capsule, est totalement fusionné puis décomprimé de façon isotherme, en suivant un taux de décompression choisi et contrôlé, permettant de simuler la remontée plus ou moins rapide d'un magma dans un conduit volcanique. En trempant l'échantillon à différentes pressions, et en l'analysant texturalement (Figure 5) et chimiquement, on peut obtenir certaines des relations qui lient les multiples paramètres contrôlant la nucléation. La pression à laquelle se fait réellement la nucléation peut notamment être obtenue, de même que l'évolution de la densité numérique de bulles.

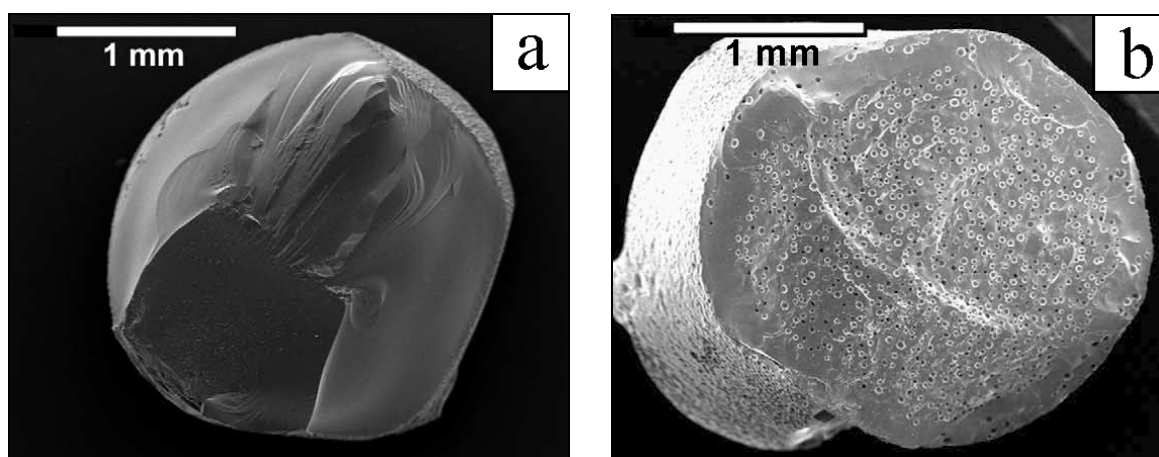


Figure 5. Exemples de verres rhyolitiques expérimentaux décomprimés à $1\,000\text{ kPa s}^{-1}$ (Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004). Le matériel de départ est un verre rhyolitique isotrope, saturé à 7 %pds d'eau, chauffé à 800°C et décomprimé depuis 260 MPa jusqu'à la pression finale. (a) Echantillon trempé à 118,9 MPa, au-dessus de la pression de nucléation homogène et donc dépourvu de bulle. (b) Expérience trempée à 69,6 MPa, sous la pression de nucléation homogène et qui présente environ $7,6 \times 10^{12}\text{ m}^{-3}$ de liquide.

Il a été démontré par ce type d'expériences que la pression de sursaturation (ΔP_N) est très élevée dans le cas d'une nucléation homogène, supérieure à 100 voire 200 MPa dans le cas du système rhyolite- H_2O . Mourtada-Bonnefoi et Laporte (2004) ont par exemple obtenu $\Delta P_N = 150\text{ MPa}$ pour des verres rhyolitiques de départ saturés à 240 MPa, 800°C (7%pds d'eau). Ils ont aussi montré, comme le suggèrent les équations de la théorie classique, que la pression de nucléation P_N (et donc indirectement ΔP_N) était quasiment indépendante du taux de décompression, celle-ci variant de moins de 5 MPa pour des taux de décompression s'étalant entre 27,8 et $1\,000\text{ kPa s}^{-1}$.

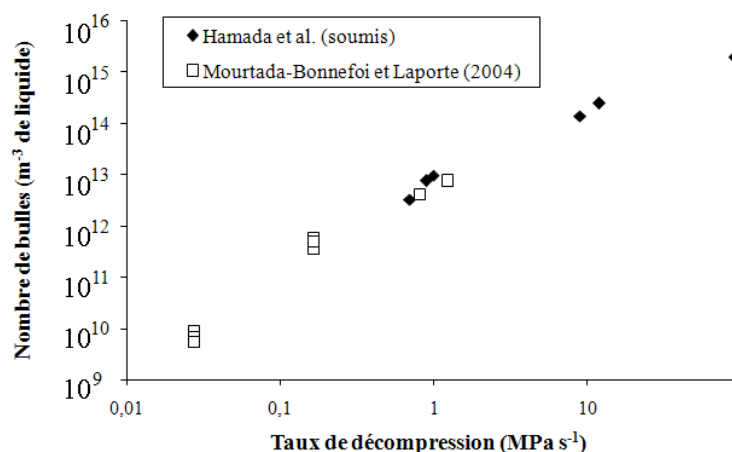
Les pressions de nucléation obtenues par les différentes études expérimentales ont aussi servi à calculer la valeur de la tension de surface liquide / gaz (et notamment rhyolite- H_2O), à l'aide de la théorie classique de la nucléation détaillée plus tôt. Ces nombreuses expériences de décompression situent la tension de surface rhyolite- H_2O dans une gamme variant de 0,073 à $0,110\text{ N m}^{-1}$ pour des conditions de saturation de 150-250 MPa et $800\text{--}900^{\circ}\text{C}$, c'est-à-dire des teneurs en eau comprises entre 5 et 8 %pds (Mangan et Sisson 2000, 2005 ; Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004).

Les données expérimentales montrent aussi que l'évolution de la densité numérique de bulles se fait en deux étapes, la première étape étant caractérisée par une augmentation importante du nombre de bulles juste après le début de la nucléation, et la deuxième par un ralentissement brutal voire un arrêt de la nucléation, visible par une stabilisation de N_v à une valeur plateau. A cause de la diffusion des molécules d'eau à l'intérieur de la bulle

(croissance diffusive), il se crée un halo autour de chaque bulle dans lequel la concentration en eau décroît en se rapprochant de la bulle. Au moins dans la partie du halo la plus appauvrie en eau (proche de la bulle), le degré de sursaturation en eau devient rapidement inférieur à la valeur requise pour déclencher la nucléation de nouvelles bulles, créant un ralentissement voire un arrêt de la nucléation.

La valeur finale de N_v augmente de manière très importante avec le taux de décompression, variant de $7 \times 10^9 \text{ m}^{-3}$ pour un taux de décompression de $27,8 \text{ kPa s}^{-1}$ à plus de $6 \times 10^{12} \text{ m}^{-3}$ pour un taux de 1 MPa s^{-1} (Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004). Une étude récente (Hamada et al. 2010) vient confirmer cette relation entre le taux de décompression et la densité numérique de bulles (Figure 6). Dans cette étude, des taux de décompression élevés, jusqu'à $90 \pm 15 \text{ MPa s}^{-1}$ ont été appliqués sur des verres rhyolitiques saturés en eau (6,6 %pds d'eau) permettant d'obtenir des N_v très élevés, jusqu'à $2 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$.

Figure 6. Relation entre la densité numérique de bulles et le taux de décompression (données issues des études de Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004 ; Hamada et al. 2010) dans le cas d'une nucléation homogène.



I.3.2.c Application de la théorie classique ; influence des différentes variables

Afin de calculer P_N et N_v via la théorie classique de la nucléation, il faut tout d'abord définir les valeurs des principales variables physiques et chimiques inhérentes au système et présentes dans les équations [8] à [13]. Ces variables sont détaillées ci-dessous et rassemblées dans le Tableau 1 :

- P_{SAT} : la pression de saturation peut être obtenue en utilisant les courbes de solubilités dépendantes du système étudié (e.g. Liu et al. 2005, cf. Figure 1).
- T et ρ_{liq} : la température et la densité du magma, considérées le plus souvent constantes tout au long de la remontée et qui sont dépendantes du type de magma étudié, peuvent être trouvées dans la littérature (e.g. Barclay et al. 1998 ; Devine et al. 2003, pour le cas de l'andésite de la Soufrière Hills à Montserrat).

- X_M : la fraction massique d'eau moléculaire en solution dans le liquide peut être calculée à partir de P_{SAT} et T notamment (Zhang 1999).
- D_{H_2O} : la diffusivité de l'eau se calcule à partir de la teneur en H_2O du liquide silicaté (Zhang et Behrens 2000), ou à partir de celle en SiO_2 (Behrens et al. 2004), ou par une combinaison des deux (Toramaru 2006). Hormis quand cela est indiqué, c'est cette dernière méthode qui a été utilisée dans tout ce manuscrit.
- σ_{LG} : la tension de surface entre le liquide et le gaz est sans doute la variable la plus problématique car elle influence fortement les résultats obtenus mais reste encore assez mal contrainte. Sa valeur pour une nucléation homogène dans un système rhyolite- H_2O tourne autour de $0,1 \text{ N m}^{-1}$ comme noté précédemment ($0,083 \text{ N m}^{-1}$ selon Cluzel et al. 2008).

Tableau 1. Symbole, nom, unité, valeur et origine des différentes variables utilisées et résultats obtenus dans l'application de la théorie classique de la nucléation homogène pour les expériences de Mourtada-Bonnefoi et Laporte (2004) et Hamada et al. (2010).

Symbole	Nom	Unité	Valeur	Origine
M	Masse molaire de l'eau	kg mol^{-1}	0,018	-
N_A	Nombre d'Avogadro	mol^{-1}	$6,02 \times 10^{23}$	-
k	Constante de Boltzmann	J K^{-1}	$1,3805 \times 10^{-23}$	-
Ω_L	Volume de molécules d'eau présentes dans le liquide silicaté	m^{-3}	2×10^{-29}	Holtz et al. (1995)
T	Température du liquide silicaté	K	1073	Mourtada-Bonnefoi et Laporte (2004) ; Hamada et al. (2010)
ρ_{liq}	Densité du liquide silicaté	kg m^{-3}	2250	Mourtada-Bonnefoi et Laporte (2004) ; Hamada et al. (2010)
X_M	Fraction massique d'eau moléculaire	%pds	0,032	Zhang (1999)
D_{H_2O}	Diffusivité de l'eau	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	$1,75 \times 10^{-11}$	Zhang et Behrens (2000)
σ_{LG}	Tension de surface	N m^{-1}	0,1	Cluzel et al. (2008)
P_{SAT}	Pression de saturation	Pa	240×10^6	Tamic et al. (2001)
$ dP/dt $	Taux de décompression du liquide silicaté	Pa s^{-1}	$0,1 \times 10^3$ à 90×10^6	Mourtada-Bonnefoi et Laporte (2004) ; Hamada et al. (2010)
P_{Li}	Pression du liquide silicaté	Pa	-	Imposé dans la modélisation
P_{B^*}	Pression à l'intérieur du nucléus critique	Pa		Equation [13]
n_0	Nombre de molécules d'eau par unité de volume	m^{-3}		Equation [12]
J	Taux de nucléation	$\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$		Equation [10]
t_i	Temps écoulé depuis le début de la décompression	s		Equation [14]
N_{vi}	Densité numérique de bulles au temps i	m^{-3}		Equation [15]

Une fois ces variables établies, une valeur pour le taux de décompression $|dP/dt|$ doit être fixée (valeur constante si on considère une décompression linéaire). Puis, en faisant décroître la pression P_{Li} du liquide silicaté depuis P_{SAT} jusqu'à 0 par décrétement de pression i (le décrétement de pression choisi n'influe pas sur le résultat) à l'aide d'un code Matlab écrit pour l'occasion, on peut calculer P_{Bi}^* pour chaque valeur de P_{Li} à l'aide de l'équation [13], le taux de nucléation à l'aide de l'équation [10], ainsi que le temps t_i écoulé depuis le début de la décompression, et la densité numérique cumulée de bulles N_{vi} , qui correspond à l'intégration du taux de nucléation dans le temps depuis le début de la décompression. Ces deux derniers paramètres sont définis par les équations suivantes :

$$t_i = \frac{P_{SAT} - P_{Li}}{|dP/dt|} \quad [14]$$

$$N_{vi} \approx \sum_{j=1}^i \left(\frac{J_{j-1} + J_j}{2} \right) \times (t_j - t_{j-1}) \quad [15]$$

Nous avons repris les conditions expérimentales de Mourtada-Bonnefoi et Laporte (2004) et Hamada et al. (2010) pour quelques uns des taux de décompression utilisés, et nous avons calculé, à l'aide de la théorie classique de la nucléation homogène, la pression de nucléation (P_N) et les densités numériques de bulles (N_v) obtenues. Cluzel et al. (2008) ont instauré une « limite de détectabilité » afin de définir la pression de nucléation P_N . En effet, si la nucléation débute en théorie dès que la toute première bulle est formée, elle n'est souvent détectable sur les échantillons expérimentaux que si la densité de bulles dépasse $0,1-1 \text{ mm}^{-3}$, selon l'état du verre (optiquement transparent, opaque...). Considérant alors que la pression de nucléation est la pression pour laquelle N_{vi} excède $0,5 \text{ mm}^{-3}$, nous obtenons des P_N de 56,1 ; 51,6 ; 46,4 ; 42,8 ; et 39,1 MPa pour des taux de décompression de $0,1 \text{ kPa s}^{-1}$; $27,8 \text{ kPa s}^{-1}$; 1 MPa s^{-1} ; 10 MPa s^{-1} et 90 MPa s^{-1} respectivement (Figure 7).

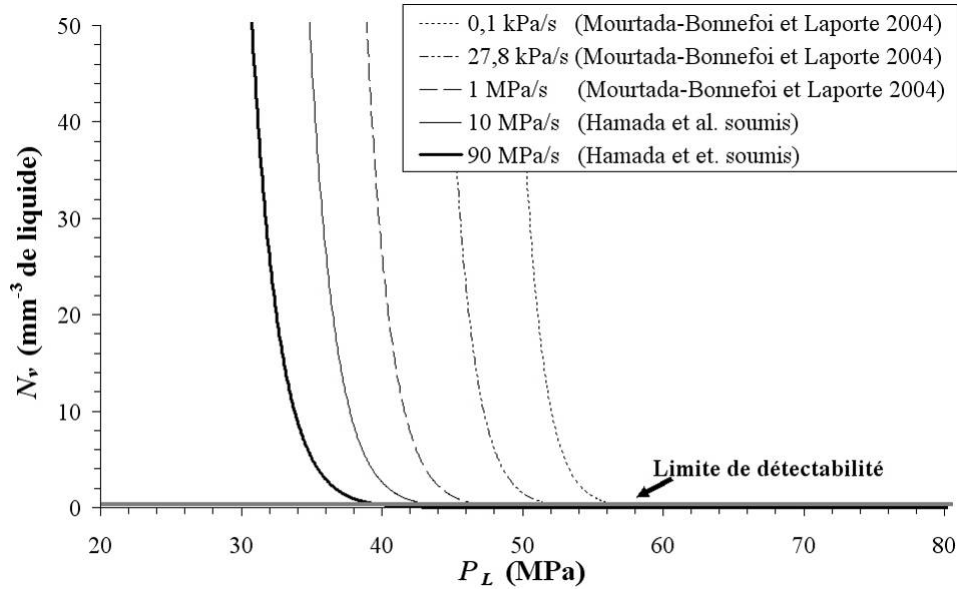


Figure 7. Résultats de l'application de la théorie classique de la nucléation homogène sur les expériences de décompression de Mourlada-Bonnefoi et Laporte (2004) et Hamada et al. (2010). D'après les données expérimentales, les paramètres utilisés dans les équations sont $P_{SAT} = 240$ MPa, $T = 800^\circ\text{C}$ (d'où $X_M = 0,032$; Zhang 1999 ; Cluzel 2007), $\Omega_L = 2 \times 10^{-29} \text{ m}^3$ (Holtz et al. 1995), $\rho_{liq} = 2\,250 \text{ kg m}^{-3}$, $D_{H_2O} = 1,75 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (Zhang et Behrens 2000), $\sigma_{LG} = 0,1 \text{ N m}^{-1}$ (Cluzel 2007). Nous avons considéré le cas d'un comportement de gaz idéal.

Ces résultats montrent que plus le taux de décompression est fort, plus la nucléation se fera à basse pression et donc plus la surpression sera importante. Cependant, on peut remarquer qu'une augmentation de ~ 5 ordres de grandeur du taux de décompression ne produit qu'une diminution d'environ 17 MPa de la pression de nucléation et que donc, l'effet du taux de décompression sur celle-ci reste modeste.

L'effet de la tension de surface liquide/gaz dans la bulle (σ_{LG}) est elle, beaucoup plus importante. Nous avons modélisé la décompression d'un verre silicaté saturé en eau à 240 MPa et 800°C (soit une teneur en eau de 7 %pds environ), avec un taux de décompression de 1 MPa s^{-1} et en faisant varier la tension de surface de 0,01 à $0,12 \text{ N m}^{-1}$. La Figure 8 montre que la pression de nucléation P_N est très sensible à la variation de la tension de surface, diminuant fortement avec l'augmentation de σ , tandis que la pression interne dans l'embryon critique P_{Bi}^* à cette pression de nucléation, décroît plus légèrement. La surpression qui est donc requise pour la nucléation est d'autant moins élevée que la tension de surface est faible.

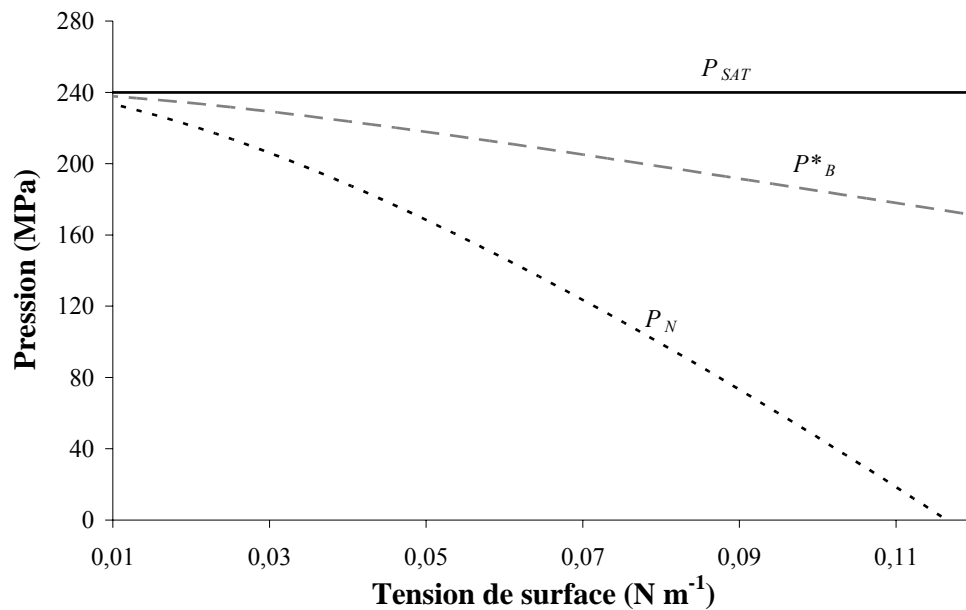


Figure 8. Influence de la tension de surface sur la valeur de la pression de nucléation (P_N) et la pression dans le nucleus critique (P^*_B). Les paramètres utilisés dans ces calculs sont $P_{SAT} = 240$ MPa ; $T = 800^\circ\text{C}$; $X_M = 0,032$; $\Omega_L = 2 \times 10^{-29} \text{ m}^3$; $\rho_{liq} = 2\,250 \text{ kg m}^{-3}$; $D_{H_2O} = 1,75 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$.

La densité numérique de bulles a un impact important sur le processus de nucléation, car elle influence directement la distance de diffusion des molécules d'eau vers les bulles, comme nous le verrons ensuite. Si N_v est élevé, la vésicularité augmente rapidement par croissance diffusive des bulles et se rapproche de la valeur à l'équilibre. En revanche, si N_v est faible, la vésicularité reste moins importante que sa valeur à l'équilibre et le degré de sursaturation en volatils dans la phase liquide continue d'augmenter avec la décompression du magma durant son ascension (Figure 4).

Cluzel (2007) a démontré que les autres paramètres entrant dans les équations de la théorie classique de la nucléation homogène avaient un effet plus faible sur la pression de nucléation. En particulier, la température magmatique (T) et la diffusivité de l'eau (D_{H_2O} , dépendante en partie de T , Zhang et Behrens 2000 ; Behrens et al. 2004 ; Toramaru 2006) n'ont qu'un faible impact sur P_N ; une variation de 200°C de la température n'entraînant qu'une variation de 21 MPa de P_N .

I.3.3 La nucléation hétérogène

I.3.3.a Théorie

La nucléation d'une bulle peut aussi se produire sur un support, par exemple sur une face de cristal. Dans ce cas la nucléation est dite hétérogène. Chaque phase minérale, voire même chaque cristal selon sa forme, va rendre le gaz plus ou moins mouillant, c'est-à-dire

qu'il va indirectement favoriser ou non la nucléation. Afin de déterminer cette aptitude du gaz à mouiller ou non sur un cristal, on définit grâce aux trois phases (cristal, liquide et gaz) un angle de mouillage, qui est calculé à partir des valeurs relatives des tensions superficielles solide/liquide, solide/gaz et liquide/gaz : σ_{SL} , σ_{SG} et σ_{LG} respectivement (Figure 9). Lorsque l'équilibre textural est atteint, on peut écrire que la somme vectorielle des tensions superficielles est nulle. Dans le plan parallèle à la face cristalline on obtient alors :

$$\cos \theta = \frac{\sigma_{SG} - \sigma_{SL}}{\sigma_{LG}} \quad [16]$$

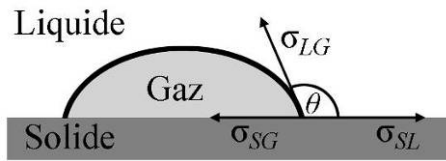


Figure 9. Définition de l'angle de mouillage. Les tensions superficielles agissant sur la ligne de jonction entre les trois phases, définissent l'angle de mouillage θ .

Les conditions sont dites mouillantes lorsque, $\sigma_{SG} < \sigma_{SL}$ et donc que $\theta > 90^\circ$ (Figure 10a). Dans ce cas, la bulle de gaz adopte une géométrie qui a pour conséquence d'augmenter l'aire de l'interface solide / gaz aux dépens de l'interface liquide/gaz qui possède une plus forte énergie interfaciale. A l'inverse, les conditions de mouillage sont faibles lorsque $\sigma_{SG} > \sigma_{SL}$ et que donc $\theta < 90^\circ$ (Figure 10b).

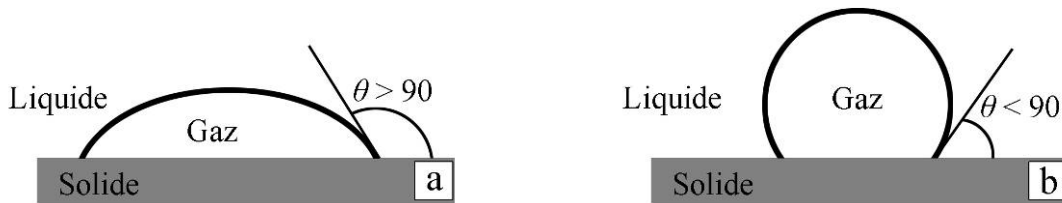


Figure 10. Différences entre des conditions mouillantes (a) et des conditions non mouillantes (b). Dans les conditions mouillantes, il y a une augmentation de l'interface solide / gaz aux dépens de l'interface liquide / gaz et c'est le contraire dans le cas de conditions non mouillantes.

La présence de supports pour la création des bulles accélère la nucléation puisqu'elle peut se faire dans des conditions de saturation en volatils moins sévères que dans le cas de la nucléation homogène. Hurwitz et Navon (1994) ont montré que l'énergie d'activation requise pour la nucléation hétérogène d'une bulle ($\Delta F_{\text{hét}}^*$) est réduite d'un facteur ϕ par rapport à celle requise pour une nucléation homogène :

$$\Delta F_{\text{hét}}^* = \frac{16\pi\sigma_{LG}^3}{3(P_B^* - P_L)^2} \phi \quad [17]$$

Où ϕ est un facteur géométrique compris entre 0 et 1 donné par la relation :

$$\phi = \frac{(2 - \cos \theta)(1 + \cos \theta)^2}{4} \quad [18]$$

Où θ est l'angle de mouillage défini précédemment.

La pression de sursaturation requise pour la nucléation (ΔP_N) est réduite d'un facteur $\sqrt{\phi}$ par rapport à la nucléation homogène :

$$\frac{\Delta P_{Nhét}}{\Delta P_{Nhom}} = \sqrt{\phi} \quad [19]$$

Où $\Delta P_{Nhét}$ est la pression de sursaturation requise pour une nucléation sur un cristal et ΔP_{Nhom} est la pression de sursaturation requise pour une nucléation homogène, dans les mêmes conditions.

Les équations [17] et [18] montrent l'importance de l'angle de mouillage. Si le liquide est parfaitement mouillant ($\theta = 180^\circ$) on obtient à la fois $\phi = 0$ et $\Delta F^* = 0$ et alors la pression de nucléation P_N est égale à la pression de saturation P_{SAT} . Dans l'autre cas extrême, celui d'un liquide parfaitement non mouillant, on aura $\theta = 0^\circ$ entraînant $\phi = 1$ et alors la présence de cristaux ne changera pas les conditions de nucléation. Entre ces deux cas limites, si par exemple $\theta = 90^\circ$, l'énergie d'activation requise pour la nucléation d'une bulle sera divisée de moitié. L'influence sur la pression de sursaturation est un peu moins importante et il faut que l'angle de mouillage soit au moins égal à $\sim 110^\circ$ pour que la pression de sursaturation soit diminuée de moitié (Figure 11).

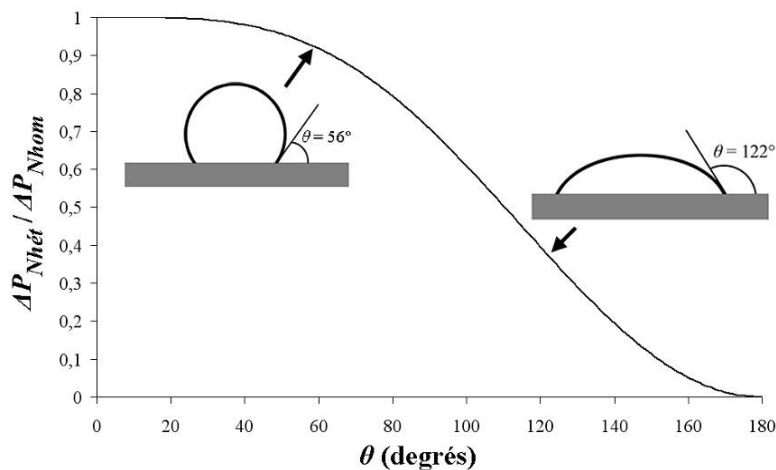


Figure 11. Influence de l'angle de mouillage sur la pression de sursaturation requise pour la nucléation hétérogène par rapport à la nucléation homogène ($= \sqrt{\phi}$). On voit que pour réduire efficacement la pression de sursaturation (d'un facteur 2 au moins), la nucléation hétérogène doit se faire sur des cristaux induisant un angle de mouillage supérieur à 110° .

I.3.3.b Apport de l'expérimentation

Il existe encore assez peu de données concernant les angles de mouillage formés par la nucléation de bulles sur les différents minéraux composant les liquides silicatés (Tableau 2). Ces angles de mouillage dépendent de la surface de la structure atomique de chaque type de cristal. Les expériences menées pour évaluer les différents paramètres de la nucléation hétérogène sont les mêmes que pour la nucléation homogène, hormis le fait que des microcristaux d'une ou plusieurs phases minérales distinctes sont ajoutés au verre de départ afin d'évaluer leur influence sur les caractéristiques de la nucléation.

Tableau 2. Angle de mouillage selon le minéral considéré

Minéral	Angle de mouillage	Source
Quartz	22-26°	Cluzel (2007) d'après Laporte (1994)
Plagioclase	<20°	Hurwitz et Navon (1994)
Biotite et diopside	>90°	Hurwitz et Navon (1994) ; Navon et Lyakhovsky (1998)
Hématite	~57-85°	Cluzel et al. (2008)
Magnétite	140-150°	Cluzel (2007)
	158,5°	Hurwitz et Navon (1994)

D'après les expériences de Laporte (1994), Cluzel (2007) a montré que les cristaux de quartz ne sont pas de bons sites de nucléation car ils possèdent un angle de mouillage très faible, de l'ordre de 22 à 26° environ. Les plagioclases non plus ne sont pas propices à la nucléation hétérogène puisque Hurwitz et Navon (1994) ont calculé leur angle de mouillage à moins de 20°. D'autres données (Hurwitz et Navon 1994 ; Navon et Lyakhovsky 1998) suggèrent que la biotite et le diopside peuvent produire des angles de mouillage > 90° mais qu'ils n'abaissent pas de façon significative la pression de sursaturation.

Cluzel (2007) a étudié expérimentalement l'influence de microcristaux d'hématite et de magnétite sur la nucléation. Ses expériences ont été effectuées sur des liquides rhyolitiques saturés en eau, à une pression de 200 MPa et une température de 800°C (~6 %pds d'H₂O), avec des taux de décompression de 27,8 kPa s⁻¹ et 1 MPa s⁻¹.

Dans le cas de l'hématite, malgré la présence d'une forte densité de microcristaux (~10¹⁵ m⁻³), la pression de nucléation reste faible et la sursaturation requise pour la nucléation est proche de celle requise pour une nucléation homogène, dans les mêmes conditions expérimentales (Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004 ; Cluzel et al. 2008). A chaque fois, la densité numérique de bulles produites est très inférieure au nombre de microcristaux d'hématite et globalement égal au N_v obtenu lors d'une nucléation homogène dans les mêmes

conditions d'expériences. L'hématite n'est donc pas un site très favorable à la nucléation des bulles et le caractère non mouillant des bulles sur ces cristaux a été mis en évidence lors de ces expériences (angle de mouillage calculé entre 57 et 85°).

En présence de microcristaux de magnétite, la pression de sursaturation en eau requise pour la nucléation chute fortement, passant de ~130-150 MPa (nucléation homogène) à 10-15 MPa seulement dans un système contenant de la magnétite, confirmant les données expérimentales précédentes ($\Delta P_{Nhét} < 5$ MPa, Hurwitz et Navon 1994 ; $\Delta P_{Nhét} < 20$ MPa, Gardner et Denis 2004 ; Gardner 2007a). Ces résultats impliquent des conditions mouillantes pour la nucléation des bulles sur les microcristaux de magnétite, confirmées par les calculs d'angle de mouillage de ~140-150° (Cluzel 2007) qui se rapprochent de la valeur estimée par Hurwitz et Navon (1994 ; 158,5°). La théorie classique de la nucléation, montre que les pressions de sursaturation obtenues dans le système rhyolite-magnétite-H₂O impliquent des tensions de surface plus faibles que pour la nucléation homogène (0,083 N m⁻¹), de l'ordre de 0,025 N m⁻¹ (Cluzel et al. 2008). Le taux de décompression influence fortement la texture obtenue, les bulles étant beaucoup plus nombreuses et plus petites dans le cas d'un taux de décompression plus élevé que dans le cas d'un taux plus faible. Le nombre de bulles produites en présence de cristaux de magnétite est beaucoup plus grand que dans le cas de microcristaux d'hématite (2 à 3 fois supérieur).

I.3.4 Expérimentation et modélisation

Les simulations théoriques de l'ascension et de la vésiculation d'un magma dans un conduit volcanique (Toramaru 1989, 1995) ont montré que les événements de nucléation étaient de courte durée, marqués par une augmentation brutale du taux de nucléation dès le franchissement de la pression de nucléation, puis une chute vers une valeur nulle après avoir atteint un maximum. Comme expliqué précédemment cette chute intervient en raison de la baisse de concentration en eau à proximité des bulles due à la diffusion, qui fait baisser le degré de sursaturation et donc le taux de nucléation. Ce comportement, observé aussi dans les expériences, a pour effet de faire augmenter N_v rapidement, avant que celui-ci ne se stabilise et arrive à une valeur stationnaire. Cette transition peut s'expliquer par le passage d'un régime dominé par la nucléation (forte augmentation de N_v) à un régime dominé par la croissance (diffusive) des bulles, induisant une stabilisation de N_v (Toramaru 2006) car la diffusion arrive à compenser la sursaturation en volatils.

Toramaru (1995 et 2006) a établi que la valeur de N_v était contrôlée principalement par trois facteurs : la tension de surface liquide/gaz (σ_{LG}), la diffusivité de l'eau (D_{H_2O}), et le taux de décompression moyen (dP/dt). La variation de ces paramètres d'entrée dans ses simulations numériques lui a permis de déterminer leur influence sur la valeur de N_v en régime stationnaire (appelée N_{STAT}) pour le cas d'un magma ne contenant que l' H_2O comme espèce volatile :

$$N_{STAT} = 34 \times C_0 \left(\frac{16\pi\sigma_{LG}^3}{3kTP_0^2} \right)^{-2} \left(\frac{\Omega_L P_0}{kT} \right)^{-1/4} \left(\frac{kTC_0 D_{H_2O} P_0^2}{4\sigma_{LG}^2 |dP/dt|} \right)^{-3/2} \quad [20]$$

Où C_0 (m^{-3} de liquide) est la concentration moléculaire initiale en eau, T (K) est la température, P_0 (Pa) est la pression initiale du magma, Ω_L ($= 3 \times 10^{-29} m^{-3}$) est le volume moléculaire de l'eau dans un liquide silicaté.

L'équation [20] permet donc, pour les expériences de décompression citées précédemment, de calculer la densité numérique théorique de bulles produites, et de la comparer avec la densité observée. Pour les expériences de nucléation homogène (Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2002, 2004 ; Burgisser et Gardner 2005 ; Hamada et al. 2010), l'application est directe, en utilisant la tension de surface σ_{LG} révisée par Cluzel et al. (2008), égale à $0,083 N m^{-1}$. Pour la nucléation hétérogène en présence de cristaux d'hématite et de magnétite, Cluzel (2007) a montré pour ses expériences, que N_v n'était pas contrôlé par la densité numérique de cristaux (N_{cx}). On peut donc essayer d'appliquer le modèle de Toramaru (2006) afin de voir si, comme pour la nucléation homogène et comme le suggère les expériences, N_v est aussi dépendant du taux de décompression notamment. La présence des microcristaux peut être prise en compte en l'assimilant à une baisse de la tension de surface (σ_{LG}) dans un milieu dépourvu de cristaux. Ainsi en remplaçant la valeur vraie de σ_{LG} par une valeur effective (plus faible et dépendante de la nature des cristaux et du verre), on peut appliquer le modèle de Toramaru (2006) à la nucléation hétérogène dans un système comportant des microcristaux d'hématite ou de magnétite.

Nous avons appliqué ce modèle à plusieurs expériences de décompression à la fois en conditions de nucléation homogène (Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004 ; Burgisser et Gardner 2005 ; Hamada et al. 2010) et hétérogène (Cluzel 2007 ; Cluzel et al. 2008). Le Tableau 3 récapitule les paramètres d'entrée utilisés pour les calculs. Seules les expériences pour lesquelles la valeur maximale de N_v semble atteinte ont été prises en compte. La diffusivité a été calculée à l'aide des équations [2] à [4] comme expliqué précédemment. La

Figure 12 montre que le modèle de Toramaru (2006) est applicable quantitativement pour la nucléation homogène et semi-quantitativement pour la nucléation hétérogène.

Tableau 3. Paramètres utilisés pour le calcul des densités numériques de bulles à l'aide du modèle de Toramaru (2006). Les données utilisées sont celles de M-B & L (Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004) et H et al. (Hamada et al. 2010) pour la nucléation homogène ; et B & G (Burgisser et Gardner 2005) ; Cluzel (2007) et C et al. (Cluzel et al. 2008) pour la nucléation hétérogène.

Source	Echantillon	T (K)	SiO ₂ (%pds)	H ₂ O (%pds)	P_{SAT} (MPa)	D_{H_2O} (m ² s ⁻¹)	σ_{LG} (N m ⁻¹)	dP/dt (kPa s ⁻¹)	N_{STAT} (m ⁻³)	N_v mesuré (m ⁻³)
M-B & L (2004)	C8	1073	76,51	6,83	240	$2,362 \cdot 10^{-11}$	0,083	27,8	3×10^{10}	7×10^9
M-B & L (2004)	B14	1073	76,51	7,05	240	$2,567 \cdot 10^{-11}$	0,083	167	$3,9 \times 10^{11}$	$3,2 \times 10^{11}$
M-B & L (2004)	A2	1073	76,51	6,92	240	$2,444 \cdot 10^{-11}$	0,083	960	$5,8 \times 10^{12}$	$2,3 \times 10^{12}$
H et al. (2010)	SN#22	1073	77,4	6,6	240	$2,276 \cdot 10^{-11}$	0,083	9000	19×10^{13}	14×10^{13}
H et al. (2010)	SN#8	1073	77,4	6,6	240	$2,276 \cdot 10^{-11}$	0,083	12000	29×10^{13}	25×10^{13}
H et al. (2010)	SN#16	973	77,4	6,6	235	$1,099 \cdot 10^{-11}$	0,083	700	11×10^{12}	33×10^{11}
H et al. (2010)	SN#23	973	77,4	6,6	235	$1,099 \cdot 10^{-11}$	0,083	900	16×10^{12}	76×10^{11}
H et al. (2010)	SN#18	973	77,4	6,6	235	$1,099 \cdot 10^{-11}$	0,083	1000	19×10^{12}	98×10^{11}
B & G (2005)	ABG6	1098	75,6	4,21	155	$8,336 \cdot 10^{-12}$	0,025	100	3×10^{13}	10×10^{11}
B & G (2005)	ABG4	1098	75,6	4,21	155	$8,336 \cdot 10^{-12}$	0,025	150	$5,4 \times 10^{13}$	29×10^{11}
B & G (2005)	ABG2	1098	75,6	4,21	155	$8,336 \cdot 10^{-12}$	0,025	100	3×10^{13}	17×10^{11}
B & G (2005)	ABG7	1098	75,6	4,21	155	$8,336 \cdot 10^{-12}$	0,025	150	$5,4 \times 10^{13}$	25×10^{11}
Cluzel (2007)	GDMgt#9	1048	76,51	6,6	200	$1,580 \cdot 10^{-11}$	0,025	1020	92×10^{13}	$1,4 \times 10^{13}$
Cluzel (2007)	GDMgt#10	1048	76,51	6,2	200	$1,364 \cdot 10^{-11}$	0,025	1040	11×10^{14}	12×10^{12}
Cluzel (2007)	GDMgt#12	1048	76,51	6,3	200	$1,415 \cdot 10^{-11}$	0,025	1010	10×10^{14}	13×10^{12}
Cluzel (2007)	GDMgt#4	1048	76,51	6,2	200	$1,364 \cdot 10^{-11}$	0,025	1000	11×10^{14}	13×10^{12}
C et al. (2008)	IK1	1073	76,51	5,5	200	$1,266 \cdot 10^{-11}$	0,078	980	15×10^{12}	5×10^{12}
C et al. (2008)	IK4	1073	76,51	4,8	200	$9,719 \cdot 10^{-12}$	0,078	990	24×10^{12}	4×10^{12}
C et al. (2008)	IK6	1073	76,51	5,4	200	$1,220 \cdot 10^{-11}$	0,078	980	17×10^{12}	6×10^{12}
C et al. (2008)	IK7	1073	76,51	6,1	200	$1,573 \cdot 10^{-11}$	0,078	1010	12×10^{12}	3×10^{12}
C et al. (2008)	IK8	1073	76,51	6,05	200	$1,545 \cdot 10^{-11}$	0,078	990	12×10^{12}	4×10^{12}
C et al. (2008)	Hem#1	1073	76,51	6,07	200	$1,556 \cdot 10^{-11}$	0,078	27,8	6×10^{10}	8×10^{10}
C et al. (2008)	Hem#3	1073	76,51	5,95	200	$1,491 \cdot 10^{-11}$	0,078	27,8	6×10^{10}	5×10^{10}
C et al. (2008)	Hem#5	1073	76,51	5,6	200	$1,313 \cdot 10^{-11}$	0,078	27,8	7×10^{10}	7×10^{10}
C et al. (2008)	Hem#6	1073	76,51	5,5	200	$1,266 \cdot 10^{-11}$	0,078	27,8	8×10^{10}	8×10^{10}
C et al. (2008)	Hem#7	1073	76,51	5,4	200	$1,220 \cdot 10^{-11}$	0,078	27,8	8×10^{10}	8×10^{10}
C et al. (2008)	Hem#8	1073	76,51	4,9	200	$1,010 \cdot 10^{-11}$	0,078	27,8	11×10^{10}	5×10^{10}
C et al. (2008)	Hem#9	1073	76,51	6,6	200	$1,876 \cdot 10^{-11}$	0,078	27,8	4×10^{10}	2×10^{10}

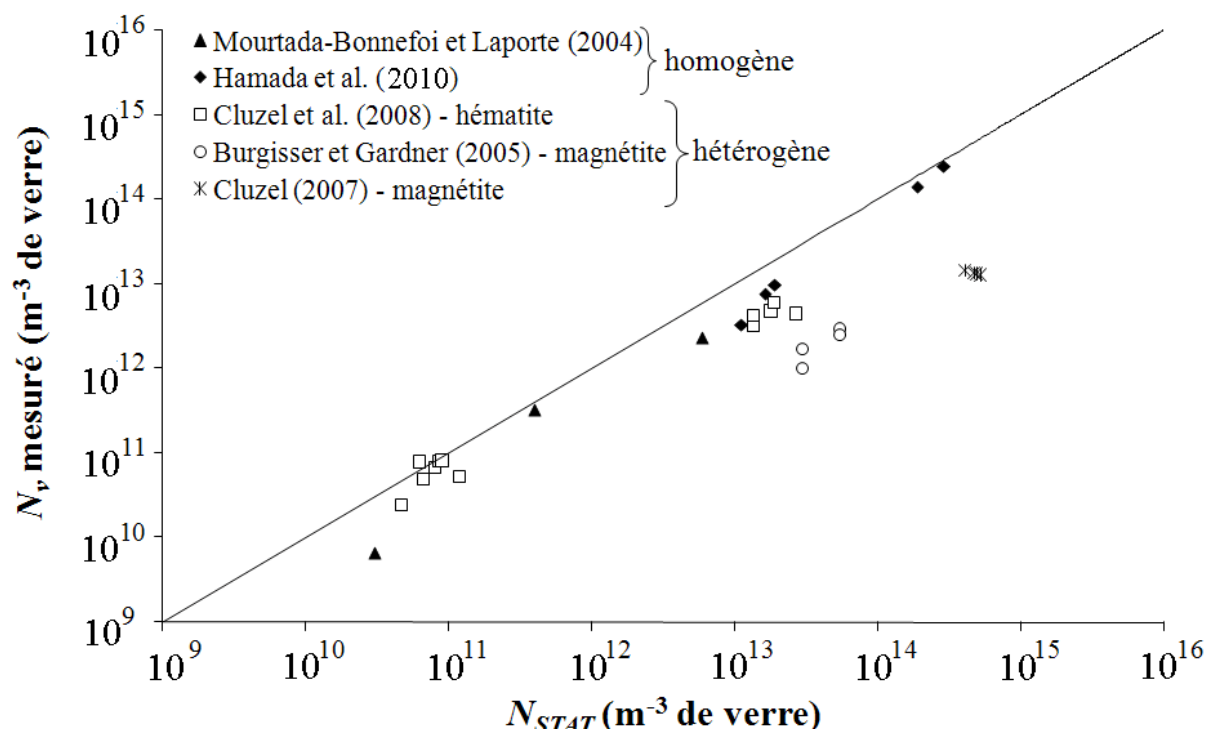


Figure 12. Comparaison entre la densité numérique de bulles mesurées expérimentalement et la densité calculée à l'aide du modèle empirique de Toramaru (2006). Les paramètres tels que la température, la pression de saturation, la teneur en H_2O ou la teneur en SiO_2 sont tirées des articles respectifs concernant ces expériences. La valeur de la tension de surface est adaptée en fonction du type de nucléation (cf. texte et Tableau 3 pour explications).

I.3.5 Nucléation homogène / nucléation hétérogène : rappel des caractéristiques

Dans le cas de la nucléation homogène, la pression de sursaturation requise pour créer les premières bulles est très élevée, dépassant 100 à 200 MPa (Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004). La densité numérique de bulles (N_v) est contrôlée par trois paramètres principaux : la tension de surface liquide-gaz, la diffusivité de l'eau et le taux de décompression (Toramaru 1995, 2006 ; Yamada et al., 2005). Le modèle de Toramaru (2006) peut être exploité pour calculer N_v , en utilisant une valeur révisée pour la tension de surface liquide rhyolitique-gaz de $0,083 \text{ N m}^{-1}$ (Cluzel et al. 2008). Les densités numériques de bulles créées sont beaucoup plus faibles que pour le cas d'une nucléation hétérogène, à taux de décompression égal.

Pour la nucléation hétérogène, seuls les cristaux de magnétite semblent abaisser significativement le degré de sursaturation du système avant le début de la nucléation et donc faciliter cette dernière. La présence d'autres cristaux (hématite, quartz, plagioclase...) conduit à une nucléation hétérogène dont les caractéristiques (ΔP_N et N_v), se rapprochent du cas de la nucléation homogène.

Pour une nucléation en présence de cristaux, Cluzel et al. (2008) ont défini deux cas :

- Si la densité numérique de cristaux N_{cx} est très élevée comparée à la densité de bulles prédites par le modèle de Toramaru (2006), alors N_v sera faible comparé à N_{cx} et, comme pour la nucléation homogène, la densité numérique de bulles sera principalement contrôlée par le taux de décompression. Dans ce cas, N_v peut être calculée de façon semi-quantitative en utilisant le modèle de Toramaru (2006) et une tension de surface corrigée pour la présence de cristaux ; de $0,025 \text{ N m}^{-1}$ pour la magnétite (Mourtada-Bonnefoi et Laporte 2004) ou de $0,078 \text{ N m}^{-1}$ pour l'hématite (Cluzel et al. 2008).

- Si au contraire N_{cx} est faible comparé au N_v prédit par le modèle de Toramaru (2006), N_v sera du même ordre de grandeur que N_{cx} , une ou plusieurs bulles étant créées sur chacun des microcristaux présents. Dans cette configuration, un deuxième événement de nucléation peut se produire, dépendant de l'évolution du degré de sursaturation en volatils du magma.

Cependant, si en théorie la densité numérique de bulles peut être calculée en utilisant le modèle de Toramaru (2006) quel que soit le type de nucléation, il est rare que le nombre de vésicules observées dans les échantillons naturels reflètent directement le nombre de bulles créées initialement. En effet, via leur croissance, les bulles peuvent coalescer, diminuant ainsi le nombre de vésicules. De plus, afin d'atteindre la limite N_{STAT} , le temps disponible pour la nucléation doit être assez long.

I.4. Croissance

I.4.1 Principe

La croissance est le processus qui engendre une augmentation du volume de la bulle. En remontant, le magma subit une décompression conduisant à une diminution de la solubilité des différentes espèces volatiles présentes, et l'exsolution se poursuit. La pression totale dans la bulle (P_B) est égale à la somme de la pression ambiante à laquelle se trouve le magma (P_i), de la tension de surface (σ_{LB}) et des forces de viscosité liées à la déformation du liquide (Lensky et al. 2004) :

$$P_B = P_i + \frac{2\sigma_{LB}}{R} + 4 \frac{dR/dt}{R} \eta_{eff} \quad [21]$$

Où η_{eff} (Pa s) est la viscosité effective qui résiste à l'expansion de la bulle.

Cette pression dans la bulle a tendance à diminuer au cours de la remontée à cause de l'expansion de celle-ci, et les molécules présentes à l'interface bulle/liquide s'évaporent, afin de rétablir l'équilibre. En conséquence, la concentration en volatils à l'interface bulle/liquide, diminue par rapport à la concentration dans le liquide situé loin de la bulle, produisant un transfert diffusif de volatils vers et dans la bulle. Cette diffusion permet de maintenir la pression dans la bulle proche de sa valeur initiale tant que la tension de surface décroît, assurant une croissance continue de la bulle.

Les modèles théoriques de croissance d'une bulle sphérique isolée dans un fluide visqueux incompressible, existent depuis plusieurs dizaines d'années (Rayleigh 1917 ; Scriven 1959). Dans le cadre de la remontée d'un magma, ce système bulle de gaz + liquide visqueux est caractérisé par une très forte viscosité du liquide silicaté et par la migration des volatils depuis le liquide sursaturé vers la bulle (Sparks 1978). Les différentes expériences visant à étudier la croissance des bulles dans des liquides silicatés (Mader et al. 1994 ; Navon et al. 1998 ; Liu et Zhang 2000 ; Mourtada-Bonnefoi et Mader 2001) ont démontré que la bulle subissait plusieurs régimes de croissance différents durant son évolution, pour lesquels des modélisations numériques et des solutions analytiques ont été proposées (Navon et al. 1998 ; Lensky et al. 2004). L'influence des bulles voisines, ainsi que des divers paramètres physiques et chimiques caractérisant le magma ont été largement développés (Toramaru 1989, 1995; Proussevitch et al. 1993 ; Lyakhovsky et al. 1996 ; Navon et al. 1998 ; Proussevitch et Sahagian 1998 ; Lensky et al. 2004). Il est apparu aux cours de toutes ces études que la croissance était contrôlée par une compétition entre trois processus dynamiques : la déformation visqueuse du magma, la diffusion des volatils vers la bulle et la diminution de solubilité liée à la décompression (Lensky et al. 2004 ; Gonnermann et Manga 2007).

I.4.2 Les différents régimes de croissance

Lensky et al. (2004) ont évalué de façon théorique l'importance relative des trois processus contrôlant la croissance de la bulle, afin de déterminer notamment le taux de croissance, et ainsi tenter de relier la taille des bulles à certains paramètres éruptifs. Pour cela, ils ont étudié le système en tant qu'un ensemble de bulles de gaz dans un liquide visqueux, considérant un empilement de sphères, chacune composée d'une sphère de gaz de rayon R (qui varie au cours du temps) et d'une couronne l'entourant, d'un rayon extérieur S (dépendant aussi du temps) dans laquelle se produisent les processus de diffusion (Figure 13). Ils ont ainsi développé une série d'équations (leurs équations 2 à 8) qui exigent un traitement

par modélisation numérique pour être résolues pour tous les cas de figure envisagés. Cependant, ils ont proposé certaines solutions analytiques pour des cas spécifiques.

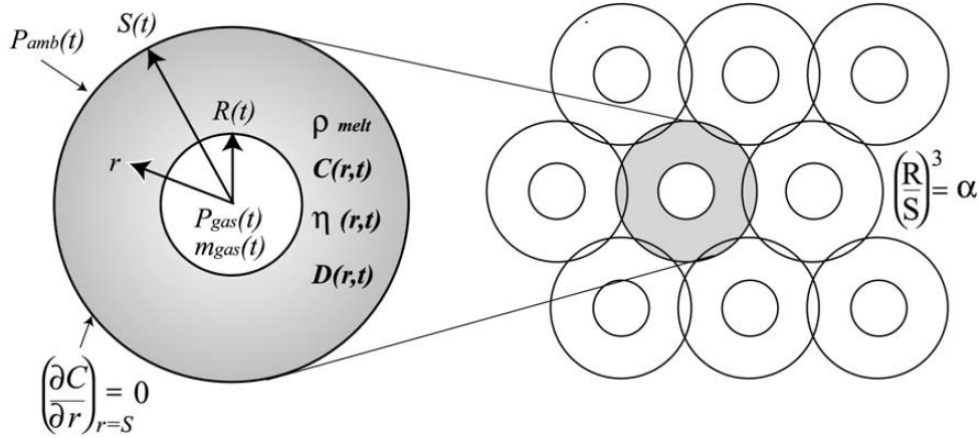


Figure 13. Modèle physique utilisé pour la définition des différents régimes de croissance par Lensky et al. (2004), modifié d'après Proussevitch et al. (1993).

Trois temps caractéristiques, se rapportant chacun à un des trois processus contrôlant la croissance de la bulle, ont d'abord été définis :

Le temps de décompression, qui est le temps qu'il faut au magma pour décompresser de la pression initiale à la pression atmosphérique, est défini par :

$$\tau_{dec} = \frac{P_i}{dP/dt} \quad [22]$$

Où P_i est la pression initiale à laquelle se trouve le magma et dP/dt est le taux de décompression moyen.

Le temps visqueux est une mesure du temps qu'il faut pour qu'il y ait une relaxation visqueuse de la surpression en gaz.

$$\tau_{vis} = \frac{4\eta_i}{P_i} \quad [23]$$

Où η_i est la viscosité initiale du liquide silicaté qui peut être obtenue à partir de la température magmatique et de la teneur en eau (Hess et Dingwell 1996).

Le temps de diffusion qui caractérise le transfert de masse par diffusion dans le liquide autour d'une bulle de rayon R_i , durant les premiers stades de la croissance, est défini par :

$$\tau_{dif} = \frac{R_i^2}{D_i} \quad [24]$$

Où R_i est le rayon initial de la bulle et D_i est la diffusivité initiale de l'eau dans le liquide silicaté (Zhang et Behrens 2000 ; Behrens et al. 2004 ; Toramaru 2006).

A partir de ces trois temps caractéristiques, Lensky et al. (2004) ont défini trois régimes de croissance qui régissent l'évolution du rayon de la bulle au cours du temps et pour lesquels ils ont présenté une solution analytique. Ils ont aussi déterminé les conditions pour lesquelles tel ou tel régime s'applique.

1.4.2.a Croissance limitée par la viscosité

Ce régime se produit lorsque la diffusion est rapide en comparaison de la décompression et de la résistance visqueuse, et que $\tau_{vis} \gg \tau_{dec}$. Dans une bulle soumise à ce régime de croissance, la pression reste proche de la pression initiale (Figure 14), ayant pour conséquence de créer une différence importante entre la pression dans la bulle et la pression ambiante. La diffusion des volatils à l'interface liquide/gaz est contrôlée par la concentration et donc par la solubilité de l'espèce volatile à cette interface. Cette dernière dépendant de la pression dans la bulle, le régime de croissance limitée par la viscosité peut induire une sursaturation en volatils, appelée parfois « trempe visqueuse » (Thomas et al. 1994). La surpression dans la bulle et la sursaturation en volatils du magma accroissent le potentiel d'une croissance accélérée ultérieure, et/ou la rupture des parois entre les bulles.

Soumise à ce régime, la bulle croît de façon exponentielle (Figure 14) :

$$R = R_i \exp\left(\frac{t^2}{2\tau_{dec}\tau_{vis}}\right) \quad [25]$$

Où R (m) est le rayon de la bulle, et t (s) est le temps écoulé depuis le début de la croissance.

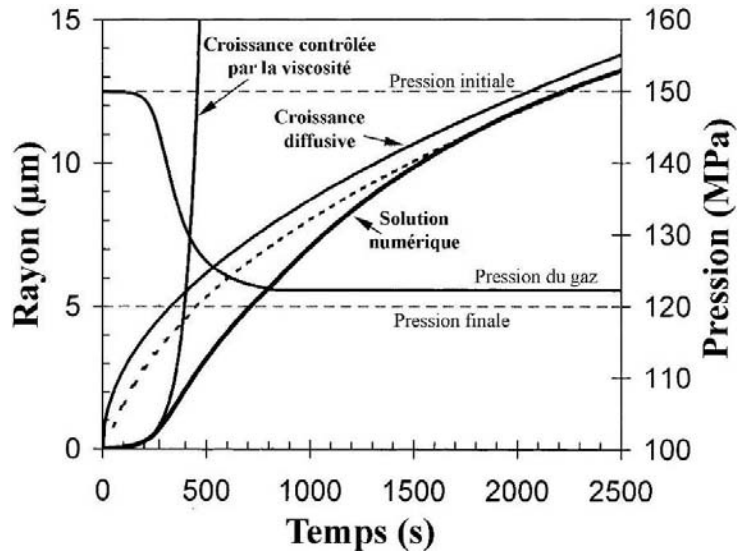


Figure 14. Exemple de l'évolution du rayon d'une bulle en fonction du temps (solution numérique en trait noir épais ; d'après Navon et al. 1998, modifiée). La croissance est d'abord exponentielle (contrôlée par la viscosité, ~ 250 premières secondes), la pression du gaz dans la bulle étant alors proche de la pression initiale (150 MPa). Ensuite la croissance est contrôlée par la diffusion des volatils dans la bulle (croissance diffusive) et la pression dans celle-ci chute et se rapproche de la pression ambiante finale (120 MPa). Pour établir ce graphique la viscosité du magma a été prise à 5×10^8 Pa s, la diffusivité de l'eau à 10^{-12} m² s et la concentration initiale en eau à 5,5 %pds.

Ce type de régime de croissance est prédit expérimentalement pour des taux de décompression $> 0,1$ MPa s⁻¹ (Gardner et al. 2000) et pour des magmas très visqueux (viscosité dépassant 10^9 Pa s). Il est aussi prédit par les modélisations numériques de la croissance des bulles (Toramaru 1995 ; Proussevitch et Sahagian 1998). Cette solution reste valable tant que la diffusion est assez élevée pour maintenir la pression du gaz dans la bulle proche de la pression initiale, c'est-à-dire tant que $t \ll \sqrt{\tau_{vis} \times \tau_{dec}}$. La croissance étant exponentielle, l'augmentation du rayon est initialement très lente pour des temps courts. En revanche, pour des temps plus longs, la croissance est très rapide, la diffusion n'est plus assez efficace pour maintenir la pression dans les bulles, et l'équation [18] n'est plus valable.

1.4.2.b Croissance limitée par la diffusion

Lorsque la diffusion n'est plus assez efficace par rapport à l'expansion de la bulle ($\tau_{dif} \gg \tau_{dec}$), la pression dans celle-ci chute et suit de près la pression ambiante (Figure 14). Dans ce régime, la diffusion des volatils dans la couronne autour de la bulle est plus lente que la diminution de la solubilité de l'espèce volatile due à la décompression, et le liquide se sursature en volatils. Cependant, contrairement au régime de croissance contrôlée par la viscosité, cette sursaturation n'est pas associée à l'augmentation de pression dans la bulle par rapport à la pression ambiante.

Considérant que la bulle est assez grande pour négliger la tension de surface, sa croissance est alors contrôlée par la diffusivité des volatils et par le taux de décompression. En supposant que la diffusion est quasi-statique (valable dès que $t > (\tau_{dif} / \pi) \cdot (R/R_i)^2$), le rayon de la bulle augmente de façon parabolique suivant l'équation :

$$R = R_i \sqrt{\frac{3}{7} \frac{\rho_{liq} \tau_{dec}}{\rho_i \tau_{dif}} C_i \left[3 \left(1 - \frac{t}{\tau_{dec}} \right)^{\frac{2}{3}} - 7 + 4 \sqrt{1 - \frac{t}{\tau_{dec}}} \right] + \left(1 - \frac{t}{\tau_{dec}} \right)^{\frac{2}{3}}} \quad [26]$$

Où ρ_{liq} est la densité du liquide silicaté, ρ_i est la densité initiale du gaz dans la bulle et C_i est le pourcentage massique de volatils dans le liquide silicaté.

En principe, la diffusivité de l'eau varie avec la concentration en eau. Cependant, Lensky et al. (2004) ont montré que la croissance de la bulle est indépendante du profil de diffusivité qui existe dans sa couronne dans le cas d'une diffusion quasi-statique durant la décompression. La diffusion des volatils dépend de la valeur de la diffusivité loin de la bulle et le profil de concentration s'ajuste de sorte que le flux d'eau demeure uniforme.

I.4.2.c Croissance limitée par la solubilité

Lorsque la pression dans les bulles approche et suit la pression ambiante, le système est proche de l'équilibre mécanique et chimique (Lensky et al. 2004). Ce régime est atteint lorsque $\tau_{dec} \gg \tau_{vis}$ et $\tau_{dec} \gg \tau_{dif}$ et induit une faible surpression dans la bulle ainsi qu'une faible sursaturation du magma en volatils. Dans ce cas, les bulles atteignent leur taille maximale et le rayon de la bulle peut être obtenu par :

$$R = S_0 \left[\left(\rho_{liq} C_0 - C_i \sqrt{1 - \frac{t}{\tau_{dec}}} \right) / \left(\rho_i - \frac{\rho_i t}{\tau_{dec}} \right) \right]^{1/3} \quad [27]$$

Où C_0 est la concentration en volatils du liquide silicaté lorsque $R \rightarrow 0$, et $S_0 = (S^3 - R^3)^{1/3} = \text{constante}$, est le rayon de la couronne entourant la bulle dans les mêmes conditions.

I.4.3 Définition du régime de croissance subi par la bulle

On peut relier le régime de croissance subi par les bulles aux trois processus dynamiques que sont le taux de décompression, la déformation visqueuse du magma et la diffusion des espèces volatiles. Pour cela, Lensky et al. (2004) ont introduit deux rapports sans dimension entre les temps caractéristiques définis précédemment : $\Theta_V = \tau_{vis} / \tau_{dec}$ et

$\Theta_D = \tau_{dif} / \tau_{dec}$. A partir de ces deux rapports, ils ont défini différentes zones dans lesquelles s'applique tel ou tel régime de croissance (Figure 15). Ainsi, à l'aide des paramètres physiques régissant la remontée du magma (pression, température, diffusivité des volatils, densité...), le style de croissance des bulles peut être déterminé et la taille de celles-ci calculée de façon numérique ou analytique quand cela est possible.

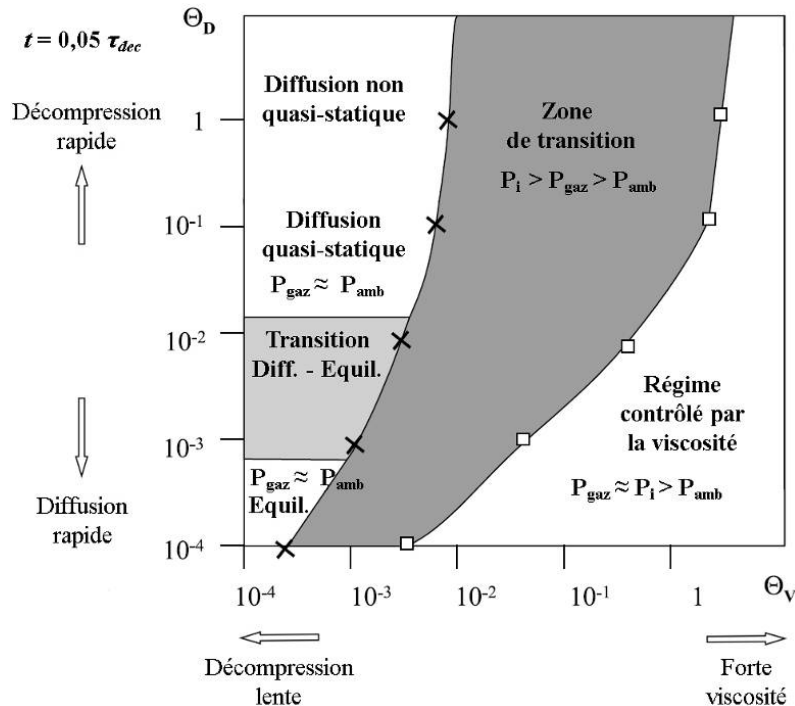
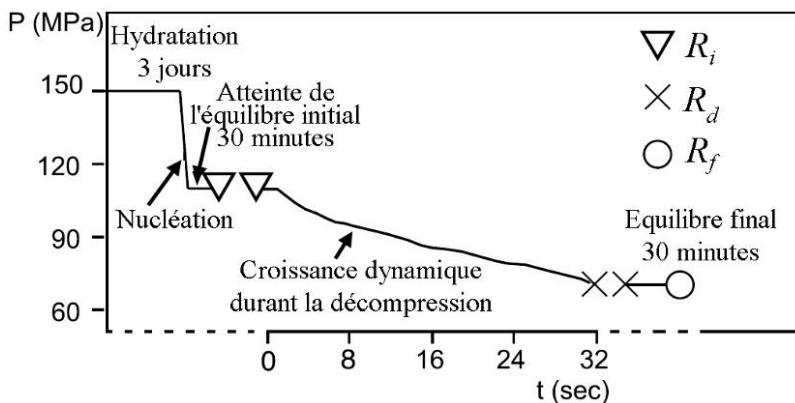


Figure 15. Régime de croissance suivi par une bulle en fonction des trois processus dynamiques que sont le taux de décompression, la déformation visqueuse et la diffusivité des espèces volatiles, exprimées sous forme de rapports (Lensky et al. 2004 ; modifié). Lorsque la viscosité est très élevée, elle contrôle la croissance. Lorsque la décompression est lente et que la diffusion très rapide, la croissance se fait à l'équilibre. Le régime diffusif se produit si la diffusion n'est pas assez efficace pour maintenir l'équilibre.

I.4.4 Vérification expérimentale des lois de croissance

Les équations reliant le rayon de la bulle au temps écoulé depuis le début de la croissance ont été vérifiées expérimentalement, à l'aide d'expériences de décompression, du même type que celles réalisées pour la nucléation (Lensky et al. 2004). Le rayon de dizaines de bulles a été mesuré à trois reprises durant les expériences (Figure 16) : R_i lors de l'équilibre initial avant la décompression, R_d immédiatement après la phase de décompression et avant l'équilibre et R_f après l'équilibre final, 30 minutes après la fin de la décompression. A chaque fois, l'échantillon est trempé, photographié pour la mesure des rayons des bulles, puis replacé dans les mêmes conditions de pression et température avant que l'expérience ne se poursuive.

Figure 16. Trajet P/t des expériences menées par Lensky et al. (2004) pour vérifier expérimentalement les lois de croissance établies de façon numérique et analytique. La décompression se fait depuis 111 MPa jusqu'à 70 MPa en 32 s ($dP/dt = 1,28 \text{ MPa s}^{-1}$).



Les mesures des rayons montrent que les bulles grossissent de façon significative entre chaque étape, ayant une croissance en déséquilibre pendant la décompression entre l'état initial et la fin de la décompression, puis une croissance isobarique jusqu'à l'équilibre à la pression finale, durant les 30 minutes après la fin de la décompression. Les rayons R_d et R_f mesurés expérimentalement sont corrélés avec R_i (Figure 17), illustrant bien le fait que la croissance est aussi dépendante du rayon initial de la bulle (équations [25] et [26]). Les conditions expérimentales détaillées précédemment donnent $\Theta_V \approx 10^{-4}$ et $\Theta_D \approx 1$, plaçant les bulles dans des conditions de croissance par diffusion (Figure 15). La valeur de R_d peut donc être obtenue analytiquement en utilisant l'équation [26] ou numériquement (équations 2 à 8 de Lensky et al. 2004). Les deux méthodes donnent des résultats très proches des rayons mesurés expérimentalement (Figure 17).

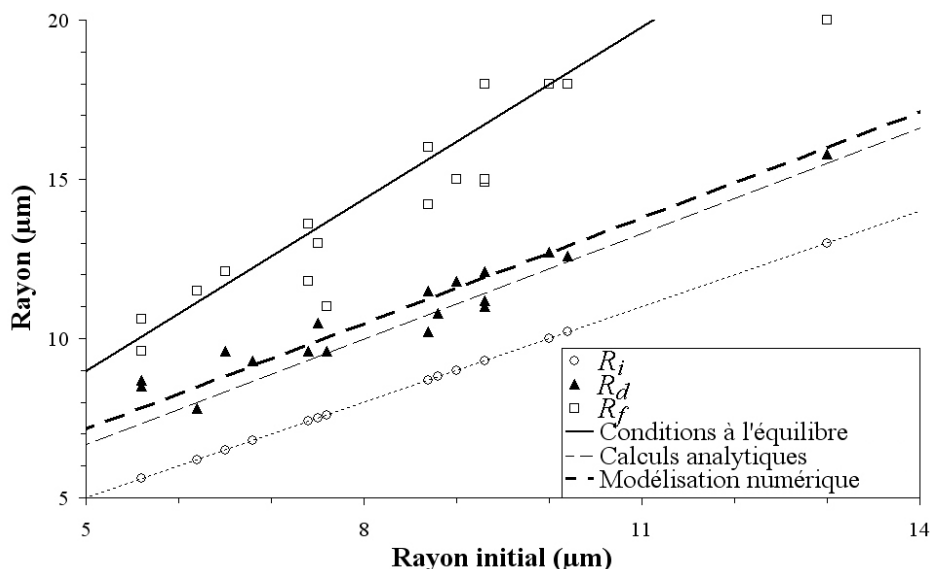


Figure 17. Rayons des bulles mesurés expérimentalement (R_i , R_d et R_f) sur des photographies des échantillons, et rayons théoriques obtenus analytiquement (R_d calculé via l'équation de croissance en régime diffusif, éq. [26]) ou numériquement (rapport $R_f/R_i = 1,8$ obtenu pour les conditions à l'équilibre, et R_d obtenu à l'aide des équations (2) à (8) de Lensky et al. 2004). Le graphique est construit à partir du Tableau 2 de Lensky et al. (2004).

La taille d'une bulle peut donc en principe être calculée à partir des conditions physiques et chimiques de la remontée du magma (pression, température, taux de décompression, viscosité...) via le calcul de deux paramètres sans dimension, qui permettent de définir le régime de croissance subi par la bulle, et ainsi de déterminer la solution analytique adéquate pour calculer son rayon. Il est à noter que la densité numérique de bulles N_v détermine l'épaisseur de la couronne entourant la bulle et dans lesquels se produisent les processus de diffusion. La croissance hors équilibre est donc fortement dépendante de N_v . Cependant, la coalescence des bulles lors de la remontée du magma peut fausser la taille mesurée de la bulle ainsi que la densité numérique initiale de bulles.

I.5. Mûrissement d'Ostwald, coalescence, perméabilité et dégazage

I.5.1 Mûrissement d'Ostwald et coalescence

I.5.1.a Principe

Les lois de solubilité bien établies des espèces volatiles (Shaw 1974 ; Silver et al. 1990), montrent qu'un magma contenant une quantité d'eau de quelques %pds (4 à > 6 %pds ; Rutherford et Devine 1988 ; Bacon et al. 1992 ; Johnson et al. 1994) devraient présenter une vésicularité supérieure à 99% lors de son émission à la surface. Cependant, les données de la littérature montrent qu'il est très rare de trouver des échantillons dont la vésicularité dépasse les 93% (Whitham et Sparks 1986 ; Houghton et Wilson 1989 ; Klug et Cashman 1991 ; Gardner et al. 1996 ; Thomas et al. 1994). Ce constat illustre l'importance du dégazage lors d'une éruption volcanique et donc celle de la perméabilité, et des processus de mûrissement d'Ostwald et de la coalescence.

Lors de la décompression du magma pendant sa remontée vers la surface, les volatils peuvent diffuser d'une bulle à l'autre, via le liquide silicaté. Ce processus de transfert des volatils, appelé mûrissement d'Ostwald, engendre la diffusion des gaz des régions à forte pression, vers les régions à plus faible pression. Les distributions de bulles étant souvent polydisperses, les transferts se font donc des bulles les plus petites vers les bulles les plus grosses (Mangan et Cashman 1996), la pression dans la bulle étant d'autant plus forte qu'elle est petite (Eq. [21]). Ainsi, les grosses bulles croissent aux dépens des plus petites qui peuvent être amenées à totalement disparaître. Ce processus tend à faire diminuer le nombre de bulles et pour un système à volume constant, conduit à une diminution de l'interface gaz/liquide. Des équations concernant le rétrécissement des bulles sont disponibles dans De Vries (1957) et Lemlich (1978) pour des distributions monodisperse et polydispense respectivement.

Cependant, comme nous le verrons par la suite, l'essentiel de la vésiculation dans nos échantillons se fait sur de courtes périodes de temps et la diffusion de l'eau est très limitée, empêchant le mûrissement d'Ostwald de jouer un rôle important dans l'évolution de la distribution de taille des vésicules.

La coalescence est l'union de deux ou plusieurs bulles dans une mousse statique ou en expansion (Figure 18). Une coalescence quasi inexistante va engendrer une préservation des gaz dans le magma sous forme de bulles isolées, et donc favoriser une éruption violente. A l'inverse, si les bulles coalescent largement, le gaz peut alors s'échapper et l'éruption aura tendance à être de type effusif (Eichelberger et al. 1986 ; Jaupart et Allègre 1991 ; Woods et Koyaguchi 1995 ; Jaupart 1998). Ainsi, la coalescence est sans doute l'un des processus capitaux dans la détermination du style éruptif.

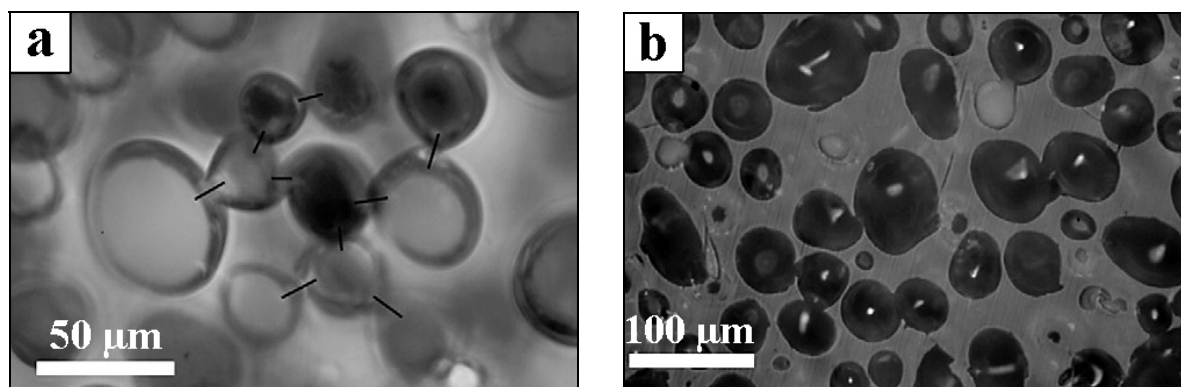


Figure 18. Evidences de coalescence dans des échantillons expérimentaux de verre rhyolitique décomprimé à 25 kPa s^{-1} (Gardner 2007b ; photographies en lumière réfléchie.). (a) Groupe de bulles connectées en trois dimensions par des chenaux ouverts, soulignés par les traits noirs. (b) Coalescence de bulles dans un verre faiblement visqueux.

Le processus de coalescence a surtout été étudié expérimentalement (e.g. Larsen et al. 2004 ; Burgisser et Gardner 2005 ; Gardner 2007b) et l'occurrence de la coalescence est souvent détectée grâce à la diminution de la densité numérique de bulles (N_v) durant les expériences, au fur et à mesure que les bulles coalescent. Le développement technique et la démocratisation de la microtomographie à rayons X notamment pourrait permettre, dans les années à venir, une étude systématique des échantillons en 3D, et ainsi accélérer la compréhension du processus de coalescence. En effet, si la nucléation et la croissance peuvent être étudiées assez facilement en deux dimensions car les bulles restent souvent sphériques durant ces processus, la coalescence implique des déformations des bulles juste avant leur union, phénomène qui ne peut être décrit en détails que via une vision en 3D du système.

1.5.1.b Facteurs contrôlant la coalescence

Comme pour les processus de nucléation et de croissance, la coalescence ne se produit pas de la même façon selon l'état de différenciation du magma. Si elle semble plus développée dans les magmas peu visqueux, à faible teneur en silice et dans lesquels bulle et liquide silicaté peuvent avoir un mouvement différentiel, elle joue néanmoins un rôle très important dans les magmas plus différenciés, ayant une viscosité plus élevée.

La coalescence se produit lorsque la paroi séparant deux bulles (ou plus) s'affine, puis se rompt, et requiert donc un mouvement du liquide constituant la paroi entre les deux bulles. Pour les bulles dont le rayon R est inférieur à 1 cm, ce drainage du liquide est contrôlé par les contraintes de capillarité (Proussevitch et al. 1993), alors que pour les bulles > 10 cm (rarement le cas dans les éruptions vulcaniennes ou pliniennes), le drainage dépend des contraintes de flottabilité (Gonnermann et Manga 2007). Le temps requis pour la coalescence de deux bulles, dépend d'une compétition entre d'une part la différence de pression qui provoque la migration du liquide depuis le centre de la paroi entre deux bulles vers l'extérieur, et d'autre part la résistance visqueuse de ce volume de liquide. Ce taux d'affinement de la paroi entre deux bulles, peut être exprimé par (Toramaru 1988) :

$$\frac{d\delta}{dt} = \frac{2\Delta P\delta_c^3}{3\eta R_c^2} \quad [28]$$

Où δ (m) est l'épaisseur de liquide constituant la paroi entre deux bulles, t (s) est le temps, ΔP (Pa) est la différence de pression entre le centre et la marge de la paroi, δ_c (m) est l'épaisseur minimale atteinte par la paroi avant de se rompre (i.e. épaisseur critique), η (Pa s) est la viscosité du liquide silicaté et R_c (m) est le rayon de courbature de l'interface entre les deux bulles.

La différence de pression ΔP intervenant dans l'équation [28] et qui agit sur le liquide composant la paroi entre deux bulles, est due à la fois à l'expansion des deux bulles lors de la remontée, mais aussi à la pression de capillarité. Cette pression de capillarité dépend de la différence entre les pressions liées aux tensions de surface des deux bulles et donc augmente avec la différence de taille entre celles-ci. Plus la différence de taille entre les bulles sera importante, plus la vitesse d'affinement de la paroi sera rapide et donc plus la coalescence sera rapide. Larsen et al. (2004) ont montré que la coalescence des bulles pouvait être très développée dans des magmas différenciés (de type rhyolitique) soumis à de forts taux de

décompression, et que donc l'acquisition d'une perméabilité pouvait se faire lors d'une remontée, même rapide, du magma ($\sim 20 \text{ m s}^{-1}$).

Une fois que les deux bulles ont coalescé, la tension de surface provoque une rétraction des deux parties de la paroi rompue. Le temps nécessaire pour que la bulle formée par la coalescence redevienne sphérique, peut être exprimé par :

$$t_{sph} = \frac{\eta R}{\sigma} \quad [29]$$

Il est admis que les bulles coalescent beaucoup plus vite (plusieurs ordres de grandeur) dans une mousse silicatée en expansion que dans une mousse statique (Westrich et Eichelberger 1994 ; Barclay et al. 1995 ; Larsen et al. 2004 ; Burgisser et Gardner 2004), ce qui est visible dans l'équation [28] via la présence de la variable ΔP .

L'effet des cristaux sur la coalescence des bulles n'est pas très bien caractérisé. Cependant, si les cristaux ont pour effet de diminuer l'énergie de surface, ils devraient aussi ralentir la coalescence, à la fois parce qu'ils diminuent la tension de surface (et donc diminuent ΔP), mais aussi parce qu'ils sont des obstacles à la circulation du liquide silicaté (Gonnermann et Manga 2007). De plus, la présence de cristaux augmente la viscosité du liquide ce qui augmente le temps de coalescence.

I.5.2 Perméabilité

La coalescence, lorsqu'elle est bien avancée, peut engendrer la formation de petits chenaux, souvent très tortueux, rendant le magma perméable, permettant au gaz de percoler puis de s'échapper hors du magma, sa vitesse d'échappement étant corrélée à la perméabilité du magma. La percolation commence lorsque la fraction de bulles dans le magma atteint $\sim 30\%$ (Sahimi 1994 ; Grimmet 1999 ; Saar et Manga 1999 ; Blower et al. 2001a et b), mais le gaz ne s'échappe de façon significative que lorsque la vésicularité atteint au moins 40-45% (Burgisser et Gardner 2004 ; Takeuchi et al. 2005). Les nombreuses mesures de perméabilité effectuées sur les échantillons de roche naturelle depuis les premières mesures d'Eichelberger et al. (1986), ont montré que la perméabilité est corrélée à la valeur de la porosité totale (Figure 19). Les relations qui lient ces deux paramètres dans les roches volcaniques différenciées sont généralement basées sur l'équation de Konezy-Carman (Carman 1956) et la théorie de la percolation (Saar et Manga 1999, Rust et Cashman 2004, Mueller et al. 2005) et sont de la forme :

$$k(\phi) = \chi(\phi - \phi_{cr})^\beta \quad [30]$$

Où χ est une constante empirique, ϕ est la fraction volumique de bulles, ϕ_{cr} est la fraction volumique de bulle critique (limite de percolation) et β est un paramètre compris entre 2 et 4.

Mueller et al. (2005) ont cependant montré à l'aide de mesures de perméabilité, que les micro-fractures dans un échantillon refroidi peuvent jouer un rôle important dans la circulation des gaz et que donc, trouver un modèle de perméabilité qui conviendrait à tous types d'échantillons volcaniques reste quasiment impossible (Takeuchi et al. 2005). La Figure 19, qui rassemble une partie des données disponibles dans la littérature et concernant des magmas différenciés, montre la grande gamme de perméabilités observables pour une même porosité, et suggère que le dégazage dans les échantillons naturels est très complexe.

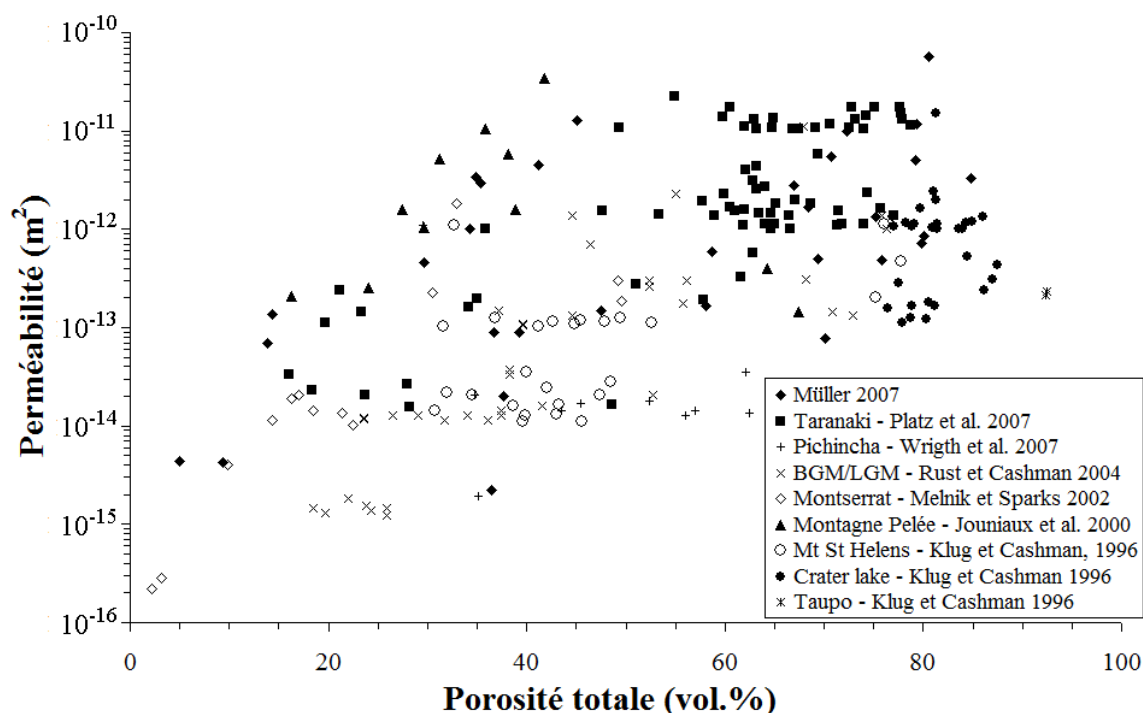


Figure 19. Mesures de porosités totales (excepté pour les données de Müller 2007 où il s'agit de porosités connectées) et des perméabilités correspondantes, sur des échantillons de roches différenciées. Les sources sont Klug et Cashman (1996), Jouniaux et al. (2000), Melnik et Sparks (2002), Rust et Cashman (2004), Wright et al. (2007), Platz et al. (2007) et Müller (2007).

La taille et la forme des bulles ont une forte influence sur le processus de coalescence et donc sur l'acquisition de la perméabilité (Saar et Manga 1999). Plus encore, la perméabilité va être contrôlée non pas directement par la taille des bulles mais par la taille des constrictiones qui existent entre celles-ci. De longues chaînes de bulles coalescées peuvent rendre le magma très perméable, même à des porosités aussi faibles que 10% (Saar et Manga 1999). La

coalescence de bulles dans un magma ayant une porosité de 40-45% peut conduire à de fortes déformations et à la création de longs tubes de bulles connectées (Burgisser et Gardner 2004), pouvant même mener à des conditions de dégazage en système ouvert (Gardner et al. 2007b). La pression à laquelle se produit cette déformation dépend en partie du taux de décompression subi par le magma (Burgisser et Gardner 2004).

I.5.3 Dégazage

La coalescence va donc contrôler l'acquisition ou non d'une perméabilité durant la remontée du magma vers la surface. Si la perméabilité existe et est assez élevée, elle peut permettre une extraction du gaz hors du système (dégazage en système ouvert). Ce dégazage module, et parfois même détermine, le style d'une éruption (Woods et Koyaguchi 1994 ; Eichelberger 1995 ; Villemant et Boudon 1998) et la mesure des gaz à la verticale de volcans à lave différenciée, suggèrent que le dégazage durant la remontée du magma vers la surface est très important (Wallace et al. 2003 ; Edmonds et al. 2003).

L'extraction du gaz hors du système dans les magmas différenciés peut se faire à la fois via les chenaux formés par la coalescence des bulles, sans requérir à un mouvement différentiel entre ces bulles et le magma (Eichelberger et al. 1986 ; Edmonds et al. 2003 ; Mueller et al. 2005) mais aussi via les multiples fractures produites lors de la déformation cassante du magma (Gonnermann et Manga 2007 ; Tuffen et al. 2003 ; Rust et al. 2004). Une fois hors du magma, le gaz peut s'extraire via les marges du conduit lorsque celles-ci sont perméables et à une pression plus faible que les bulles (Jaupart et Allègre 1991 ; Eichelberger 1995). Le dégazage peut laisser intact le réseau de bulles connectées s'il ne fait qu'emprunter le passage qu'elles forment vers l'extérieur du magma. Cependant, il peut aussi conduire à l'effondrement du réseau de bulles sur lui même, aboutissant à la résorption de ces dernières.

Il est très probable que le dégazage commence en profondeur lors de la remontée du magma (Taylor et al. 1983 ; Jaupart 1998) et peut continuer jusqu'à ce que le magma ait perdu une grande partie de sa teneur initiale en volatils (Eichelberger et al. 1986 ; Westrich et Eichelberger 1994). En revanche si le dégazage est inexistant ou n'est pas assez efficace, et que le gaz reste piégé sous forme de bulles dans le magma, les surpressions peuvent engendrer une fragmentation du magma.

I.5.4 Fragmentation

La fragmentation est le processus qui transforme le magma (phase liquide contenant une phase gazeuse sous forme de bulles ou de clusters de bulles) en une phase gazeuse contenant des fragments de liquide qui seront par la suite éjectés dans l'atmosphère et dont la texture peut encore évoluer durant le transport. Ce processus se produit souvent dans la partie supérieure du conduit et son intensité est directement à relier à celle de l'éruption.

On a longtemps pensé que la fragmentation se produisait lorsque la fraction volumique de bulles dans le magma atteignait une certaine limite et à cause de l'instabilité des fines parois entre les bulles (Verhoogen 1951 ; Gardner et al. 1996). Cependant, les données expérimentales (Mader et al. 1994 ; Martel et al. 2000 ; Ichihara et al. 2002) suggèrent que cette fragmentation par expansion ne peut se faire que dans les magmas à faible viscosité (Koyaguchi et Mitani 2005). De plus, le fait que les échantillons naturels des éruptions explosives présentent des vésicularités variant de 0 (obsidienne) à plus de 98% (réticulite) montre qu'il n'y a pas de preuve physique de l'application générale de ce critère d'expansion.

Il existe plusieurs autres critères pour déterminer quand la fragmentation a lieu, basés notamment sur l'hypothèse qu'elle se produit lorsque la pression à l'intérieur des bulles est assez élevée pour provoquer la rupture brutale des parois entre les bulles (McBirney et Murase 1970 ; Alidibirov 1994 ; Zhang 1999). Suite à de nombreuses expériences de décompression durant lesquelles se produisait une fragmentation des échantillons, Spieler et al. (2004) ont proposé une relation simple entre la surpression dans les bulles nécessaire pour provoquer la fragmentation du magma (ΔP_{frag} = limite de fragmentation), et deux caractéristiques physiques du magma qui sont la fraction volumique de bulles (ϕ = porosité) et la résistance à la tension du magma (σ_{melt}) :

$$\Delta P_{frag} = \frac{\sigma_{melt}}{\phi} \quad [31]$$

L'équation [31] montre que, plus la porosité du magma est élevée, plus la surpression nécessaire pour provoquer la fragmentation est faible (Figure 20).

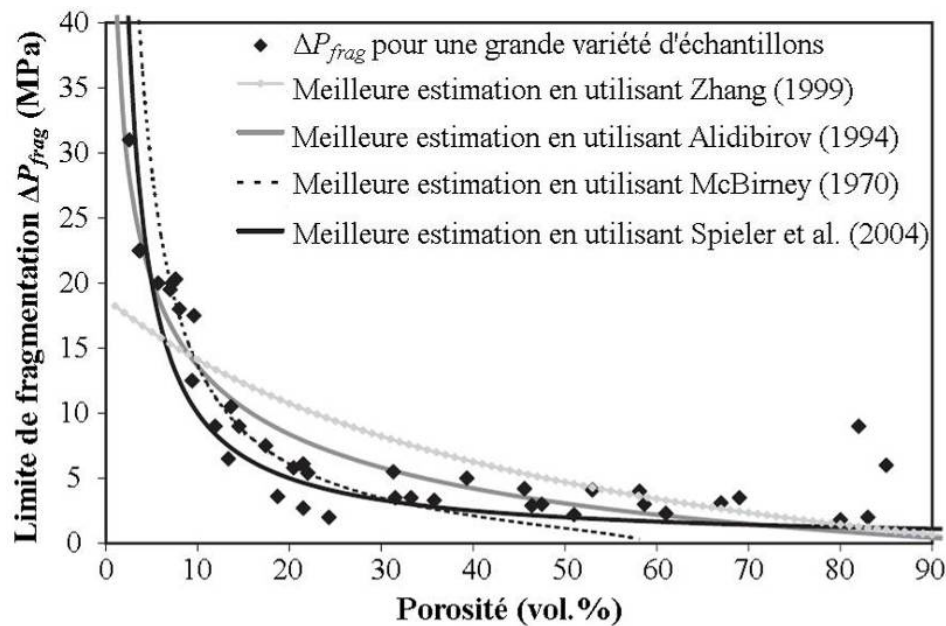


Figure 20. Limites de fragmentation en fonction de la porosité d'un échantillon (Spieler et al. 2004 ; modifiée). Données obtenues par expériences de décompression et fragmentation, à 850°C sur des échantillons provenant de plusieurs volcans à éruptions explosives (Unzen, M é r a p i, E t n a, C h a m p s P h l é g r é e n s, S a n t o r i n, M o n t s e r r a t, M o n t S a i n t H e l e n s). Les différentes courbes correspondent aux meilleures estimations en utilisant les modèles de Zhang (1999, en utilisant une force de tension de 9,4 MPa), de Alidibirov (1994, avec une force de tension de 5,9 MPa) et de McBirney et Murase (1970, force de tension de 1,5 MPa).

La surpression nécessaire pour provoquer la fragmentation se produit dans des conditions de croissance des bulles limitée par la viscosité et donc dépend en premier lieu du taux de décompression subi par le magma.

I.6. Evolution des distributions de tailles de bulles

Il existe dans la littérature une multitude de graphiques utilisés pour rendre compte de la distribution de taille des bulles en termes de nombre mais aussi de volume. Récemment, Shea et al. (2010) ont essayé d'établir une méthodologie permettant de rassembler les données dans quelques graphiques seulement (leur Figure 1), et ainsi simplifier leur lecture. Nous n'utiliserons dans les paragraphes suivants, que deux types de graphiques, l'un représentant la distribution numérique cumulée des bulles en fonction de leur taille, et l'autre la variation de la fraction volumique qu'occupent ces bulles. Le deuxième graphique est sous la forme d'un histogramme pour lequel les classes de taille utilisées sont de type logarithmique. Les intégrations des distributions numérique et volumique sur l'ensemble de la gamme de tailles, donnent directement la densité numérique totale (N_v) et la porosité (Φ) de l'échantillon, respectivement.

Ces distributions de taille varient au cours de la remontée d'un magma, en fonction de l'intervention (ou non) et de l'importance des différents processus détaillés précédemment (nucléation, croissance...). Etant donné que ces distributions peuvent être extraites des analyses texturales, il est intéressant de caractériser leur évolution théorique avant d'interpréter les distributions obtenues sur les produits naturels.

I.6.1 Nucléation et croissance

I.6.1.a Distributions unimodales et polymodales

Si un seul évènement de nucléation, assez bref, se produit lors de la remontée du magma, et qu'il est suivi par une croissance diffusive des bulles, les distributions à la fois du nombre mais aussi de la fraction volumique en fonction de la taille des bulles seront unimodales (Figure 21a, b). Si le magma subit plusieurs évènements de nucléation bien distincts et séparés dans le temps, les distributions seront polymodales (Figure 21c et d, pour 3 évènements de nucléation). Chaque pic dans la distribution de la fraction volumique représente alors un évènement de nucléation.

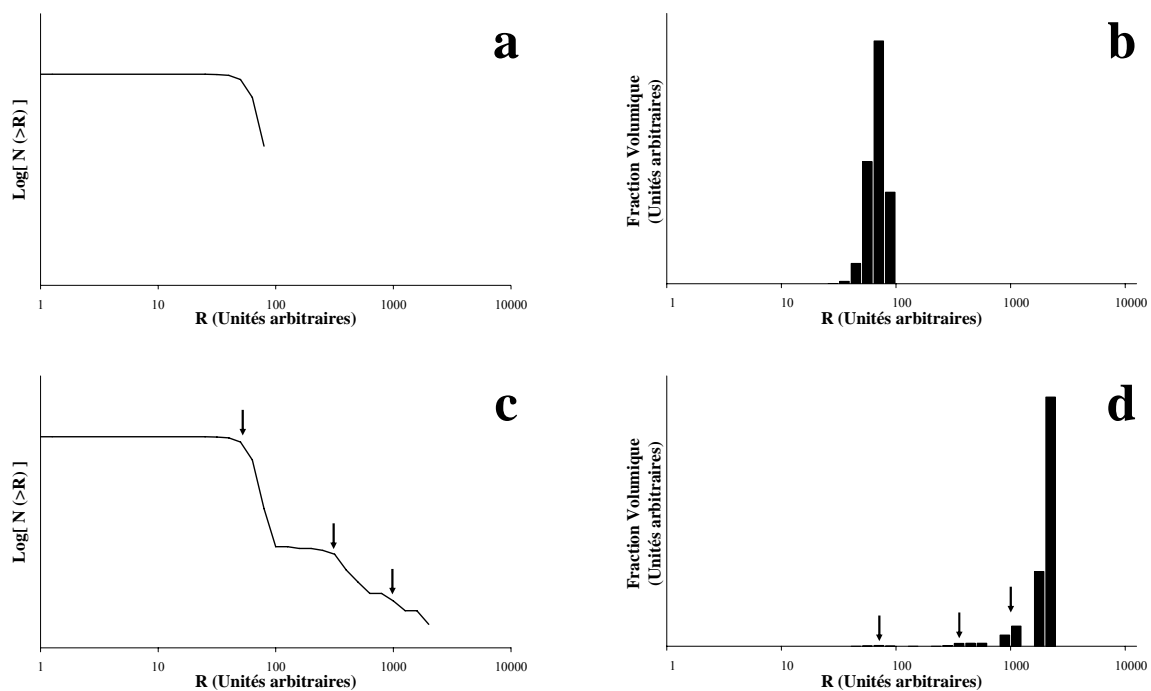


Figure 21. Distributions numériques (a et c) et volumiques (b et d) des bulles en fonction de leur taille pour un seul (a et b) ou trois (c et d) évènements de nucléation discrets, suivis d'une croissance diffusive continue. Ces distributions ont été réalisées de façon empirique et les unités sont toutes arbitraires. La densité numérique est dominée par les petites bulles alors que la distribution volumique est dominée par les grandes bulles, les populations de bulles de taille moyenne et petite (flèches noires) n'apparaissant quasiment pas en termes de volume dans le cas de 3 évènements de nucléation (d) alors qu'elles dominent largement la distribution numérique (c).

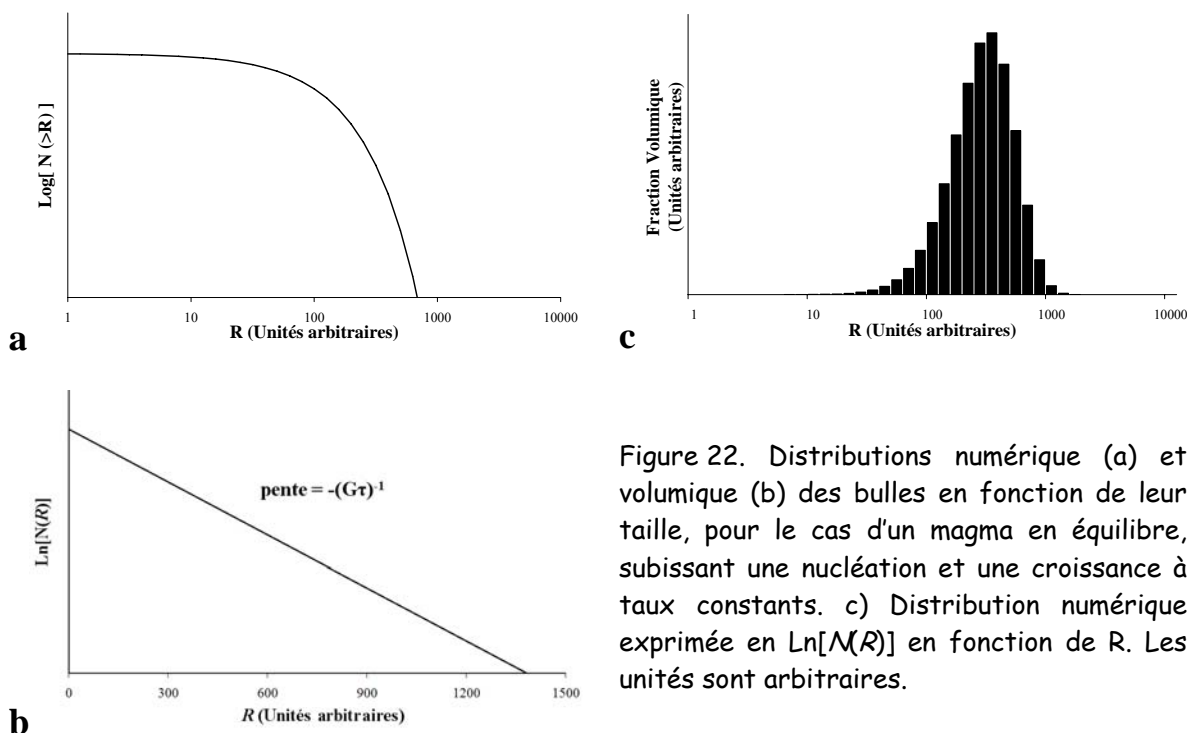
I.6.1.b Distributions exponentielles

Si on considère que durant sa remontée, le magma est un système en équilibre, avec une nucléation se produisant à taux constant, et que les bulles ainsi formées grossissent de façon continue, le nombre de bulles d'une classe de taille est donné par :

$$N(R) = N_0 \exp\left(-\frac{R}{G\tau}\right) \quad [32]$$

Où N_0 est le nombre initial de nuclei, τ est le temps disponible pour la croissance de la bulle et G est son taux de croissance.

Ce régime de nucléation et de croissance à taux constants engendre une distribution numérique des bulles de type exponentiel (Figure 22a), qui ne varie pas au cours du temps, le nombre de bulles d'une classe de taille donnée dépendant de l'avancement du processus de croissance. Une distribution de la fraction volumique correspondant à ce type de distribution numérique est présentée en Figure 22b. Le mode de cette distribution dépend du temps disponible pour la croissance des vésicules.



Ce régime de vésiculation provient du régime proposé pour la nucléation et croissance des cristaux (Marsh 1988). Dans ce cas de figure, des paramètres de l'éruption tels que le taux de croissance (G) et le temps disponible pour la croissance des bulles (τ), peuvent être directement extraits de la distribution de taille, car lorsqu'elle est tracée dans un graphique

$\ln[N(R)]$ en fonction de R , la distribution numérique de taille de bulles correspond à une droite de pente égale à $-(G\tau)^{-1}$.

Cependant, ce modèle qui se base sur un état à l'équilibre du magma lors de la remontée s'écarte en partie de la réalité, car les modélisations numériques de la croissance de bulles par diffusion et décompression (Sparks 1978 ; Proussevitch et Sahagian 1996 ; Blower et al. 2001a, b) montrent que les taux de croissance sont souvent loin d'être constants. De plus, les expériences de Mourtada-Bonnefoi et Laporte (1999, 2002, 2004) et les études théoriques de Toramaru (1989, 1995) montrent que la nucléation se fait plutôt sous la forme d'un événement discret dans le temps que de manière continue.

1.6.1.c Distributions en loi de puissance (fractales)

Les distributions en loi de puissance (Figure 23), s'appliquent dans le cas d'un magma qui n'est pas à l'équilibre et sont du type :

$$N(R) \propto R^{-(d+1)} \Rightarrow N(> R) \propto R^{-d} \quad [33]$$

Où d est l'exposant de la loi de puissance, $N(R)$ étant la distribution numérique de tailles de bulles et $N(> R)$ étant la distribution numérique cumulée.

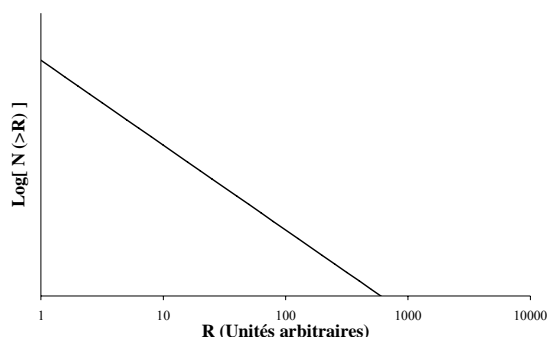


Figure 23. Distribution numérique des bulles en fonction de leur taille pour le cas d'une nucléation continue se produisant en même temps que la croissance par décompression. Les unités sont arbitraires.

Blower et al. (2001b et 2002) proposent que ce type de distribution reflète une nucléation continue et une croissance par décompression qui se produisent simultanément lors de la remontée du magma. Les expériences de Simakin et al. (1999), dans lesquelles une cascade d'événements de nucléation se produit en même temps que la croissance des bulles (et pour lesquelles aucune coalescence entre les bulles n'est observée), montrent ce genre de distribution en loi de puissance. Cependant, si la nucléation se produit de façon plus discrète dans le temps comme le suggèrent Mourtada-Bonnefoi et Laporte (1999, 2002, 2004) et Toramaru (1989, 1995), il faut invoquer d'autres mécanismes permettant d'expliquer ces distributions exponentielles, tel que l'intervention du processus de coalescence entre les

vésicules que nous observons dans nos échantillons (Chapitres 3 et 4) et dont l'impact sur les distributions de taille des vésicules est discuté après.

I.6.2 Passage d'un type de distribution à l'autre

Blower et al. (2002) ont réalisé plusieurs expériences de décompression simulant la nucléation et la croissance de bulles, dans un matériau dont les propriétés sont proches de celles d'un magma silicaté visqueux. Dans cette même étude, ils ont également modélisé numériquement la nucléation et la croissance de bulles dans un système en 3D, simulant la remontée d'un magma vers la surface. Dans ce modèle numérique, les premières bulles nucléent et grossissent en réponse à la décompression du magma. D'autres événements de nucléation se produisent ensuite, les nouvelles bulles étant créées le plus loin possible entre deux bulles déjà existantes (Figure 24), c'est-à-dire là où la concentration en volatils est la plus forte et donc les conditions plus propices à la nucléation de nouvelles bulles (Lyakhovsky et al. 1996). Il est à noter qu'aucun événement de coalescence ne se produit dans ces modélisations.

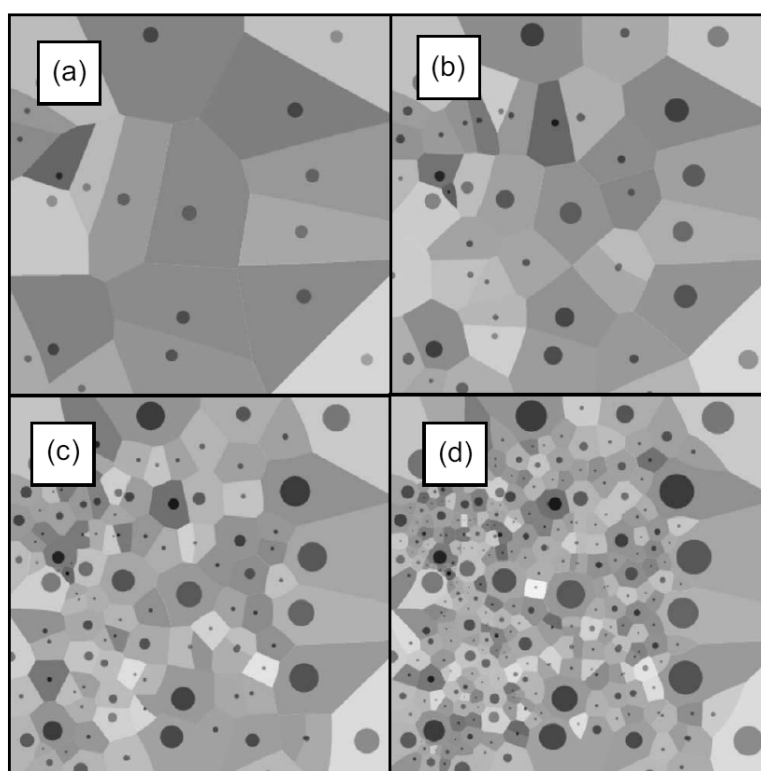


Figure 24. Construction du modèle numérique de Blower et al. (2002). (a) Représentation de l'état du système après le premier événement de nucléation. Les différentes sphères représentent les bulles et les zones grisées montrent les zones d'influence de chaque bulle dont les limites sont déterminées par les demi-distances entre les centres de chaque couple de sphères. (b) représente l'état du système après le deuxième événement de nucléation. Les nouvelles bulles ont nucléé arbitrairement aux frontières des zones d'influence. (c) et (d) représentent deux autres états d'avancement du système.

Ces modélisations analogiques et numériques ont montré que tous les types de distributions détaillés précédemment pouvaient être engendrés uniquement par une combinaison entre les processus de nucléation et de croissance des bulles. Le résultat principal est que la forme de la distribution de taille dépend fortement du nombre d'évènements de nucléation se produisant durant la croissance des bulles. Un seul évènement de nucléation suivi d'une croissance par décompression donne une distribution unimodale (Figure 25a). Après un faible nombre d'évènements de nucléation (typiquement ~ 3), la distribution se rapproche du type exponentiel. Le modèle arrive donc à produire une distribution de type exponentiel, sans recourir à l'hypothèse d'un magma en équilibre ou à un taux de croissance constant. Au delà de ~ 5 évènements de nucléation successifs, la distribution de taille est clairement en forme de loi de puissance, et le nombre d'évènements contrôle la valeur de l'exposant (Figure 25b), celui étant de l'ordre de 1,80 pour 5 évènements et augmente jusqu'à 2,15 pour 10 évènements par exemple.

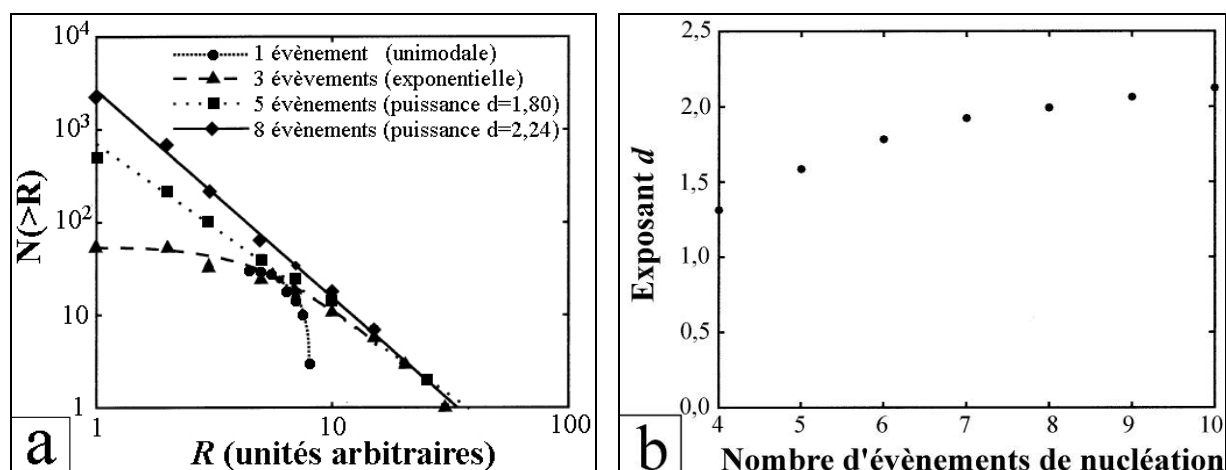


Figure 25. Principaux résultats des modélisations numériques réalisées par Blower et al. (2002) simulant les nucléations successives de plusieurs populations de bulles en même temps que la croissance. (a) Impact du nombre d'évènements de nucléation sur le type de distribution produite. (b) Valeur de l'exposant de la loi de puissance en fonction du nombre d'évènements (> 5).

I.6.3 Impact de la coalescence et du dégazage

Deux autres types de processus important se déroulant lors de la vésiculation du magma engendrent des modifications dans la forme de la distribution de taille des bulles : la coalescence et le dégazage.

La coalescence engendre nécessairement une diminution de la densité numérique de bulles et est en général accompagnée d'une augmentation de la porosité totale de l'échantillon. Sur une distribution initiale de type exponentiel, la coalescence des vésicules les plus grandes va avoir tendance à faire évoluer la partie droite de la distribution vers une

distribution de type loi de puissance (Figure 26a). Sur la distribution volumique, la coalescence va engendrer une distribution avec un coefficient de dissymétrie positif, pouvant même parfois engendrer la formation d'un pic distinct vers les plus grandes tailles (Figure 26b). Il se peut aussi que la coalescence se produise quasiment sans augmentation de la vésicularité (coalescence statique). Dans ce cas, l'influence de la coalescence sur la distribution volumique sera la même, excepté le fait que la porosité totale (intégration de la distribution volumique) ne variera pas.

Le dégazage provoque, via la résorption des bulles, une courbature de la distribution numérique cumulée vers les plus grandes tailles (Figure 26c), réduisant fortement la porosité totale de l'échantillon en diminuant de manière considérable la fraction volumique correspondant aux bulles de grandes tailles (les plus touchées par le processus de résorption, Figure 26d).

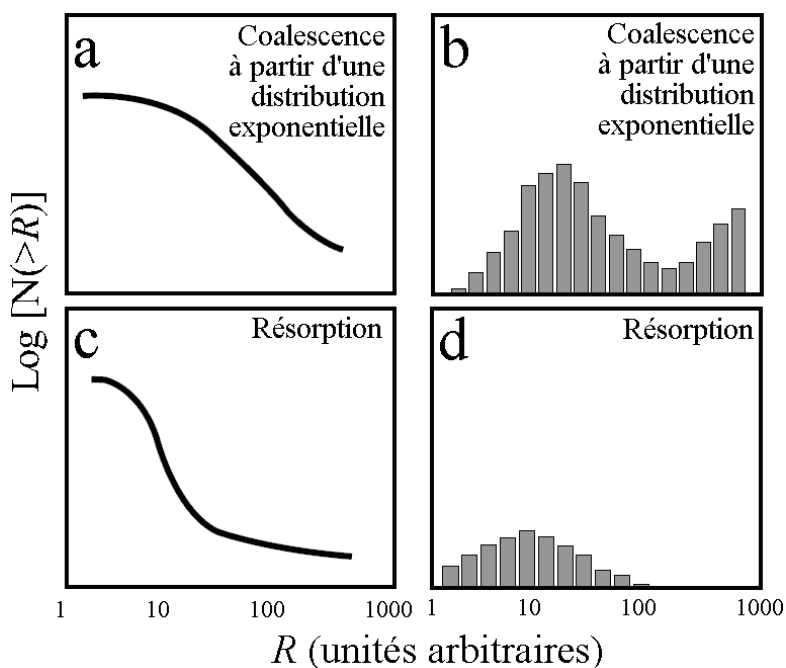


Figure 26. Effet de la coalescence (a, b) et de la résorption des bulles lors du dégazage (c, d) sur les distributions numérique et volumique des vésicules, initialement de type exponentiel (d'après Shea et al. 2010 ; modifié).

La forme de la distribution de taille des vésicules va donc dépendre de l'intervention de multiples processus, chacun d'eux ayant un impact différent. Les interprétations réalisées à partir de l'analyse de ces distributions peuvent être nombreuses et il est donc important de coupler ces distributions de taille de bulles avec des observations directes réalisées sur l'échantillon, telles que des relations spatiales entre vésicules, des comparaisons de textures entre produits ayant subi des histoires thermodynamiques différentes, etc. Nous verrons par la suite (Chapitres 3 et 4) que les distributions de taille des vésicules obtenues sur les produits

des explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills peuvent être expliquées par une combinaison de tous ces processus (nucléation, croissance, coalescence, dégazage...).

I.7. Les vésicules dans les produits naturels

I.7.1 Observations de départ

Les volcans présentent une très grande diversité de styles éruptifs ; de l'éruption effusive souvent passive qui dure de quelques jours à plusieurs décennies, à l'éruption ultra-plinienne qui peut perdurer plusieurs jours, en passant par des explosions vulcaniennes qui s'achèvent au bout de quelques dizaines de minutes à plusieurs heures. Cette palette de styles éruptifs se reflète dans les produits émis par ces éruptions, ceux-ci exhibant une très large gamme de tailles, de chimies et de textures. Même avec une chimie identique, les échantillons provenant d'une seule et unique éruption, montrent souvent un éventail assez large de textures, comme l'illustre la Figure 27 présentant six clastes différents, provenant tous d'une explosion vulcanienne de la Soufrière Hills de Montserrat en 1997.

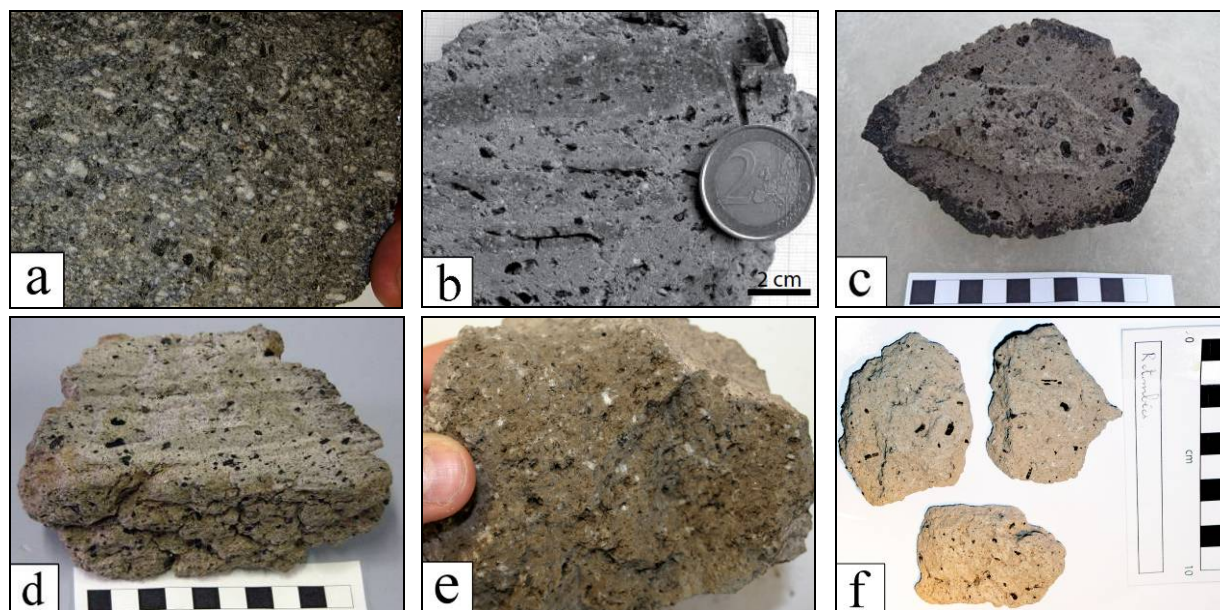


Figure 27. Gamme de textures visibles dans les dépôts des explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills à Montserrat en 1997. Tous ces échantillons juvéniles présentent la même chimie, mais ont des textures très différentes. Leur porosité totale notamment, varie de ~0% (a) à quelques dizaines de % pour des ponces sombres (e) jusqu'à plus de 70% pour les ponces les plus vésiculées (f). Celle-ci varie parfois au sein d'un même échantillon (b-d).

Ces différentes textures sont le résultat notamment de l'intégration dans le temps de l'ensemble des processus détaillés précédemment (nucléation, croissance, coalescence, dégazage, fragmentation). Si ces processus peuvent être étudiés indépendamment de façon

expérimentale, tenter de les identifier dans les échantillons naturels, afin de quantifier leur importance et leur impact sur le style éruptif, relève souvent du challenge.

I.7.2 Résultats et interprétations des analyses texturales

I.7.2.a Observations générales

Certains des paramètres texturaux détaillés dans le paragraphe I.2. (densité numérique, porosité, distribution...), ont été extraits de l'analyse de nombreux échantillons de tous types : basaltes type MORB (Sarda et Graham 1990), basaltes (Mangan et al. 1993 ; Toramaru 1990), basaltes andésitiques (Gurioli et al. 2008), trachybasaltes et trachytes (Mastrolorenzo et al. 2001), phonolites (Gurioli et al. 2005), dacites (Sparks et Brazier 1982 ; Klug et Cashman 1994 ; Polacci et al. 2001 ; Adams et al. 2006), rhyodacites (Sparks et Brazier 1982 ; Heiken 1987 ; Klug et al. 2002), rhyolites (Sparks et Brazier 1982 ; Bouvet de Maisonneuve et al. 2008). Les résultats de certaines de ces études figurent dans le Tableau 4. La Figure 28 montre qu'il existe une relation, même légère, entre la teneur en silice de l'échantillon et la vésicularité totale et la densité numérique totale de vésicules. Ceci montre l'impact du processus de vésiculation du magma sur la détermination du style éruptif, considérant de façon générale que l'éruption est d'autant plus explosive qu'elle implique un magma plus différencié.

Tableau 4. Porosités totales et densités numériques de bulles issues des études texturales d'échantillons naturels selon leur chimie.

<i>Source bibliographique</i>	<i>Volcan étudié</i>	<i>Type de roche</i>	<i>Porosité totale (%)</i>	<i>N_v (m^{-3} de liquide)</i>
Sarda et Graham 1990	Moyenne des MORB	Basalte type MORB	16	$7,9 \cdot 10^9$
Mangan et al. 1993	Kilauea (É-U)	Basalte	44 à 76	$3 \cdot 10^9 - 4 \cdot 10^9$
Toramaru 1990	Izu-Oshima (Japon)	Basalte	58 à 72	$8,2 \cdot 10^{10} - 2,3 \cdot 10^{11}$
Mastrolorenzo et al. 2001	Champs Phlégréens (Italie)	Trachybasalte à Trachyte	27 à 72	$1,2 \cdot 10^{10} - 6,1 \cdot 10^{14}$
Toramaru 1990	Towada (Japon)	Andésite à Rhyolite	50 à 70	$2 \cdot 10^{11} - 4 \cdot 10^{12}$
Klug et Cashman 1994	M ^t S ^t Helens (É-U)	Dacite	71 à 86	$8,2 \cdot 10^{14} - 2 \cdot 10^{15}$
Adams et al. 2006	Novarupta (É-U)	Dacite	52 à 75	$2,8 \cdot 10^{14} - 2,1 \cdot 10^{15}$
Polacci et al. 2001	Mt Pinatubo (Philippines)	Dacite	69 à 84	$10^{14} - 10^{15}$
Klug et al. 2002	Crater Lake (É-U)	Rhyodacite	78 à 81	$3,6 \cdot 10^{14} - 2,9 \cdot 10^{16}$
Heiken 1987 (dans Klug et Cashman, 1994)	Thira, Santorin (Grèce)	Rhyodacite	69 à 73	$>10^{17}$

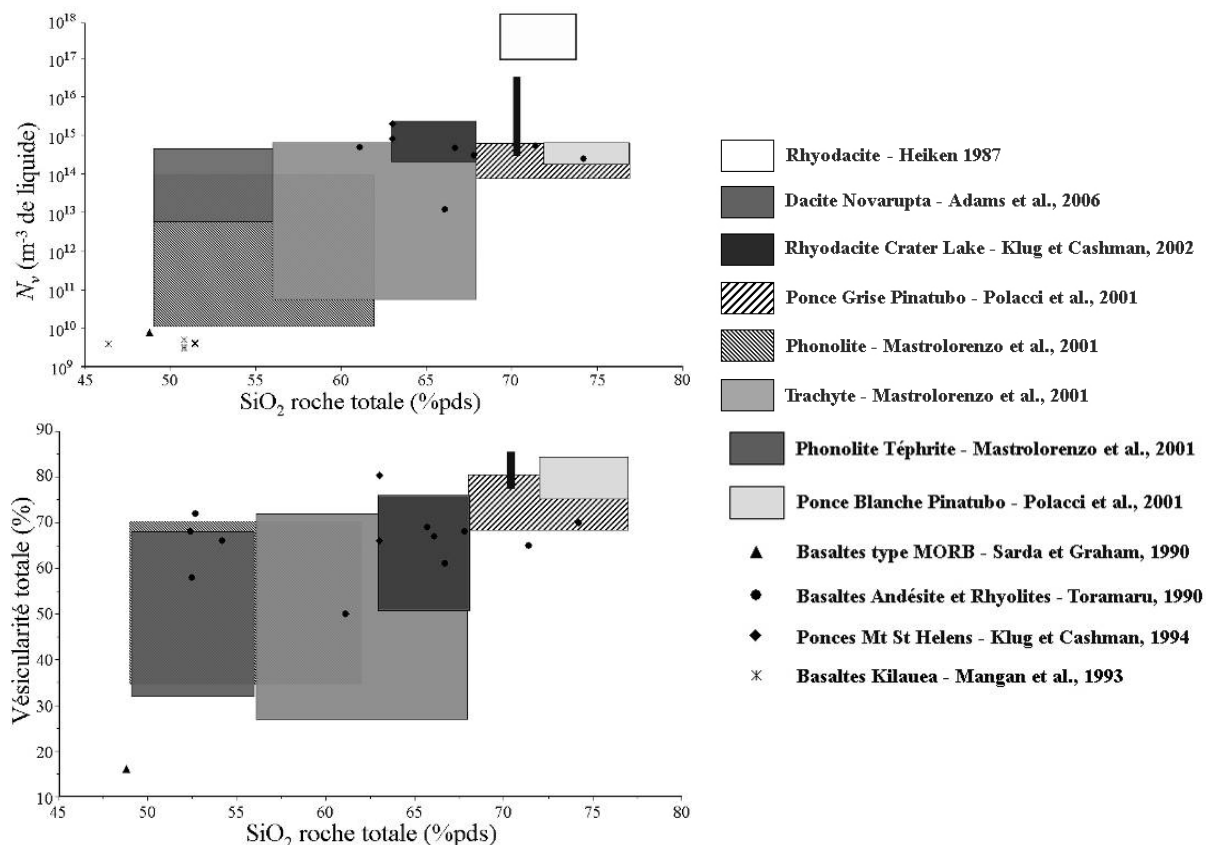


Figure 28. Relations entre la teneur en silice d'une roche et sa densité numérique de bulles et sa porosité totale. De façon générale, plus une roche est riche en silice, plus sa vésicularité est élevée et plus la densité numérique de bulles qu'elle renferme est importante.

1.7.2.b Plusieurs évènements de nucléation

Les distributions numériques de taille des vésicules dans les produits naturels sont de natures variées ; des distributions uni- et poly- modales ont été observées (Sparks et Brazier 1982 ; Whitham et Sparks 1986 ; Orsi et al. 1992) ; le modèle de Marsh (1988) pour les distributions exponentielles a été appliqué aux distributions de vésicules (Sarda et Graham 1990 ; Mangan et al. 1993 ; Klug et Cashman 1994 ; Mangan et Cashman 1996 ; Burnard 1999) ; et beaucoup de distributions numériques des bulles dans les ponce sont de type loi de puissance (Klug et al. 2002 ; Adams et al. 2006). Les distributions volumiques sont elles, la plupart du temps, uni- ou poly- modales, et se différencient les unes des autres par l'importance de leur dissymétrie.

Sparks et Brazier (1982) ont interprété leurs distributions de volume bimodales, obtenues par porosimétrie à mercure dans les ponce de diverses éruptions pliniennes (Mont Saint Helens, Santorin, Vésuve, Askja, Tierra Blanca), comme étant le résultat de deux évènements distincts de nucléation, l'un s'étant produit dans la chambre magmatique avant l'éruption (produisant un pic vers les grandes tailles, $\sim 100 \mu m$; Figure 29) et l'autre

évènement ayant eu lieu durant l'éruption (pic aux tailles intermédiaires). Le troisième pic vers $\sim 1 \mu\text{m}$ dans leurs distributions, correspond aux constriction entre les vésicules (Whitham et Sparks 1986 ; Figure 29). En effet, la porosimétrie fournie en réalité une distribution de la taille des constriction entre les vésicules et non pas directement la taille des vésicules elles mêmes. De plus, lors de l'injection du mercure dans l'échantillon, les parois les plus fines ont pu être rompues, faussant quelque peu les distributions obtenues. Les mesures de Sparks et Brazier (1982) constituent néanmoins les premières mesures de distributions de tailles des pores réalisées sur des éjectas volcaniques.

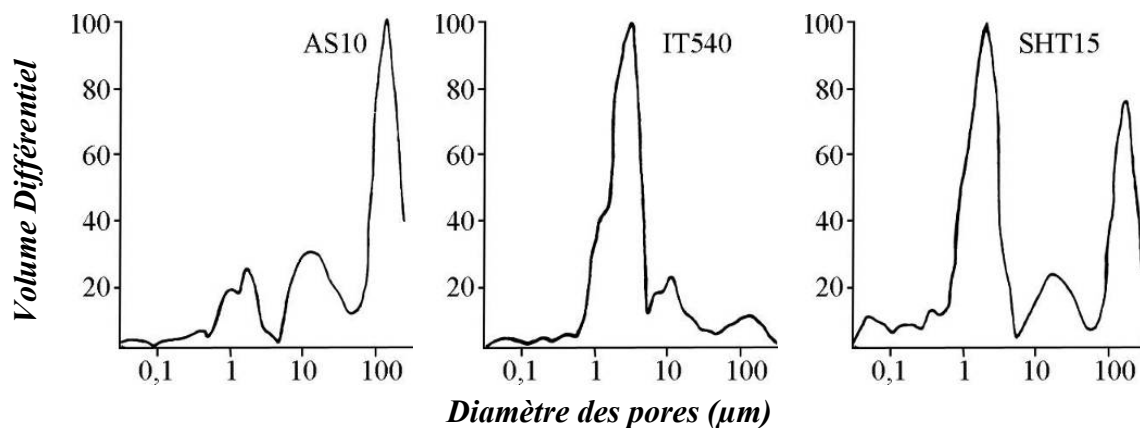


Figure 29. Distributions du volume différentiel des vésicules, en fonction du diamètre des pores, obtenues par porosimétrie à mercure sur trois ponces d'Askja (AS10), du Vésuve (IT540) et du Mont Saint Helens (SHT15) par Sparks et Brazier (1982). Les diagrammes ont été modifiés afin de placer les vésicules les plus petites à gauche. On voit bien la plurimodalité de la distribution.

1.7.2.c Nucléation, croissance et coalescence

Orsi et al. (1992) interprètent leurs distributions bimodales obtenues dans les ponces d'Ischia (Figure 30a), comme étant le résultat d'un évènement de nucléation syn-éruptif suivi de l'intervention de la coalescence, créant le deuxième pic vers les grandes tailles. Cette interprétation est étayée par des évidences de coalescence des grandes vésicules, visibles sur les images en microscopie électronique à balayage (Figure 30b).

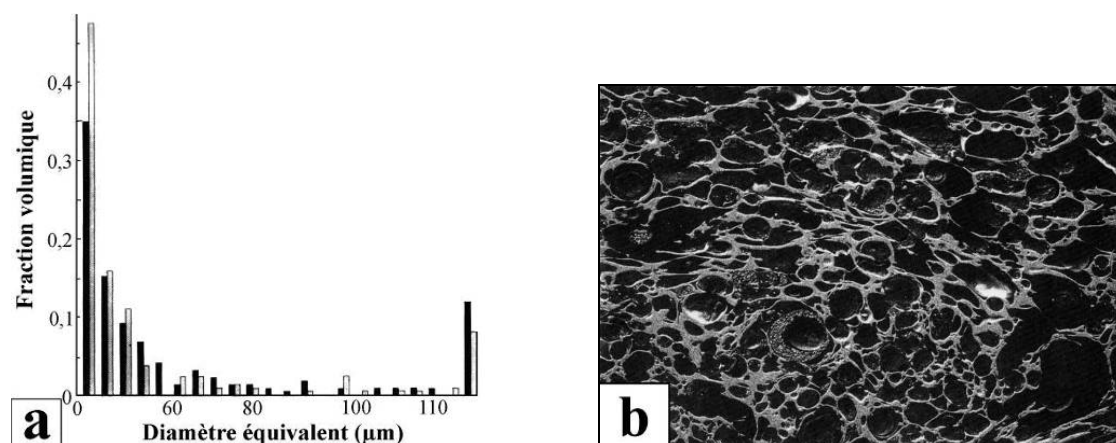


Figure 30. Distribution volumique des vésicules en fonction de leur diamètre équivalent (a) dans des ponces d'Ischia et photographie au microscope électronique à balayage d'une lame mince d'une de ces ponces (b ; Orsi et al. 1992 ; modifié). On voit la bimodalité sur la distribution volumique dont le deuxième pic (grandes tailles) est dû à la coalescence des petites vésicules.

Les ponces de l'éruption du Mont Mazama (Crater Lake ; ~5 700 ans avant J.-C.) montrent des distributions de volume clairement polymodales (Klug et al. 2002 ; Figure 31a). Les distributions numériques cumulatives correspondantes sont divisées en deux parties : les bulles plus petites que ~10-20 μm définissent une distribution exponentielle alors que les vésicules plus grandes présentent une distribution en loi de puissance, avec une pente de -3,3 (Figure 31b). Selon les auteurs, les petites bulles proviendraient d'une nucléation rapide, en peu d'évènements, juste avant la trempe de l'échantillon et les grandes vésicules seraient le résultat de la coalescence de ces dernières et non pas d'évènements de nucléation antérieurs. En effet, la valeur de l'exposant de la distribution exponentielle obtenue dans cette étude ($d = 3,3$), est supérieure au maximum qui puisse être obtenu par une série d'évènements de nucléation ($d = 2,45$ pour un empilement apollonien, qui est l'agencement le plus compact de sphères ; Anishchik et Medvedev 1995 ; Blower et al. 2002). De plus, il existe des évidences visuelles de cette coalescence (Figure 31c). Cependant, Klug et al. (2002) suggèrent aussi que certaines des grandes vésicules pourraient provenir d'un épisode de nucléation antérieur, sans doute dans la chambre magmatique.

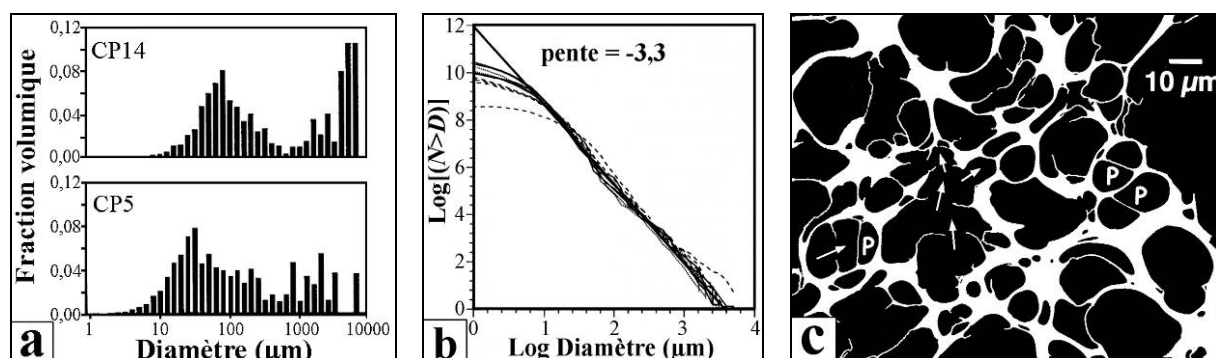


Figure 31. Distributions volumique (a) et numérique cumulée (b) des vésicules dans des ponces du Mont Mazama. (c) Image binaire issue d'une photographie au microscope électronique à balayage montrant des évidences de l'intervention du processus de coalescence via la présence de certaines parois en cours de disparition (Klug et al. 2002 ; modifiées).

Les mêmes distributions ont été obtenues dans des ponces provenant de l'éruption du Novarupta en Alaska en 1912, qui s'est déroulée en trois phases distinctes et dont seules la fin de la phase 2 et la phase 3 ont été étudiées (Adams et al. 2006). Les distributions de volumes sont unimodales (Figure 32a) alors que les distributions numériques cumulatives présentent aussi une forme exponentielle pour les vésicules $< 30 \mu\text{m}$ et une distribution en loi de puissance pour les vésicules plus grandes (Figure 32b). Là encore, l'intervention de la coalescence est avancée pour expliquer ce changement dans la forme de la distribution à une certaine taille ($d = 3,9$). La comparaison avec les données expérimentales suggère l'occurrence d'une nucléation homogène (Adams et al. 2006) pour expliquer le nombre de vésicules. Dans les échantillons de la phase 3 de cette éruption, la migration de la distribution vers les petites tailles et la présence de parois plus épaisses entre les vésicules suggère le développement du processus de dégazage (forte perméabilité) conduisant à une résorption des vésicules et donc à un épaississement du verre résiduel entre celles-ci (Figure 32c et d).

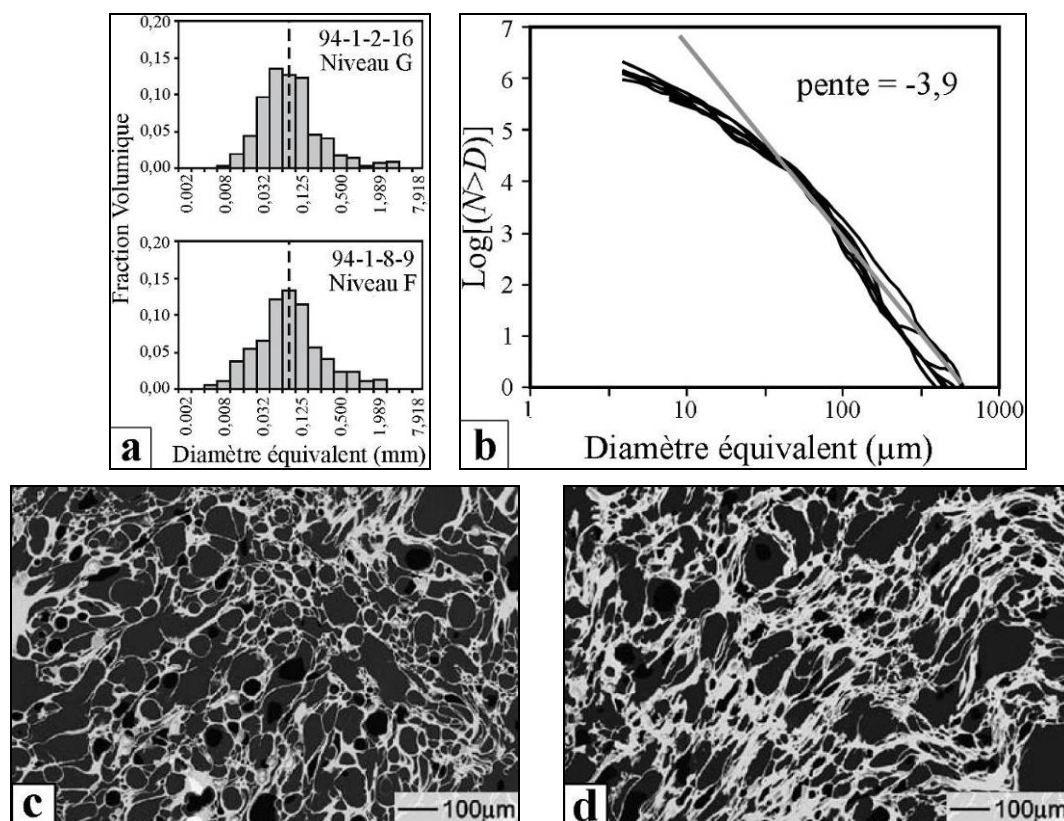


Figure 32. Distributions volumique (a) et numérique (b) des vésicules dans des ponces du Novarupta (Adams et al. 2006 ; modifiée). On voit l'unimodalité de la distribution du volume et la division de la distribution numérique en deux parties, les vésicules plus petites que $\sim 30 \mu\text{m}$ présentant une distribution exponentielle alors que les vésicules plus grandes définissent une distribution en loi de puissance. (c) Image MEB d'une ponce comportant majoritairement des vésicules de taille intermédiaire avec des parois fines. (d) Image MEB d'une ponce montrant des vésicules déformées avec des parois de verre plus épaisses.

Dans ces deux études (Klug et al. 2002 et Adams et al. 2006), la densité numérique totale de vésicules est du même ordre de grandeur, de 10^{14} à 10^{15} m^{-3} de liquide.

D'autres études proposent des interprétations dans les changements de régime d'une éruption à partir des analyses texturales des produits. Ainsi Gurioli et al. (2005) proposent un schéma complet de l'évolution de la vésiculation et de la micro-cristallisation entre les phases EU2 et EU4 de l'éruption du Vésuve en 79 avant J.-C., illustré en Figure 33. Les différentes densités numériques obtenues aussi bien pour les vésicules que pour les cristaux peuvent être expliquées par des mélanges de magmas pendant l'éruption créant des conditions plus ou moins propices aux processus de nucléation et croissance des bulles et des cristaux ainsi que pour la coalescence des vésicules et le dégazage.

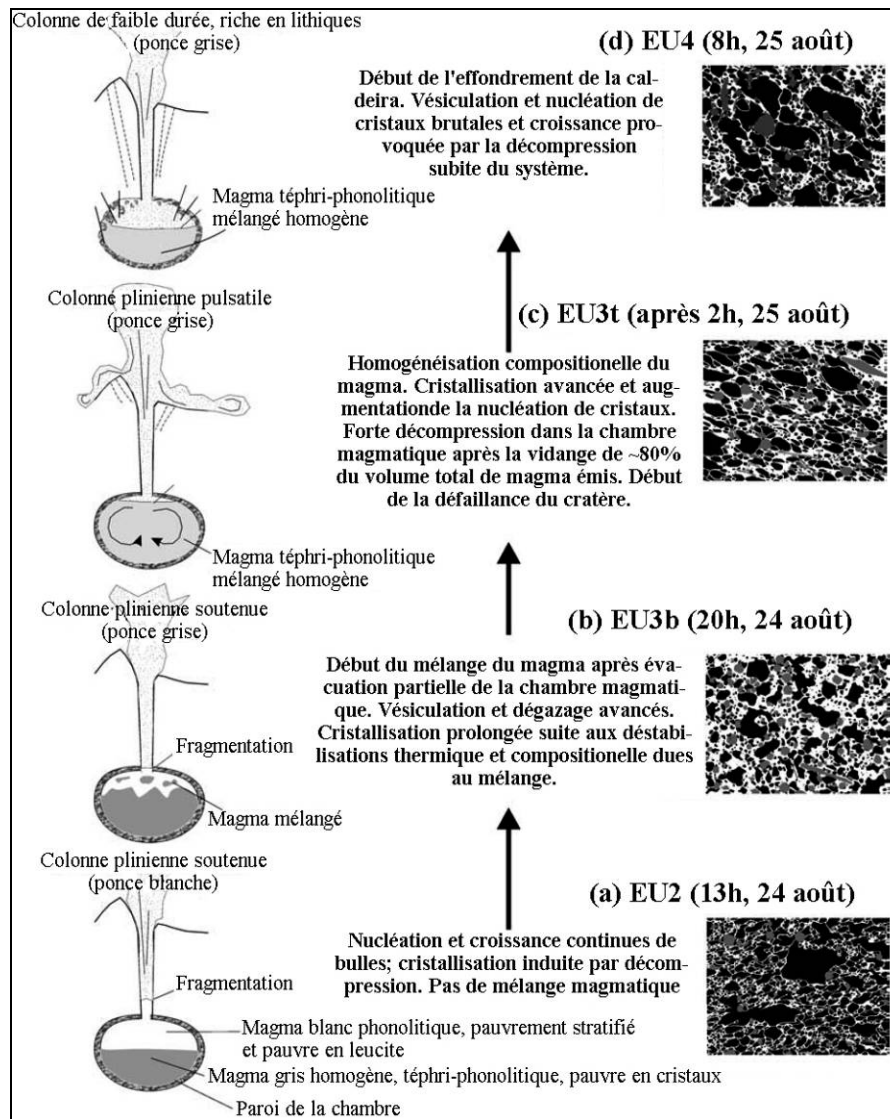


Figure 33. Schéma récapitulatif montrant l'évolution texturale du magma en fonction du temps lors des phases EU2 à EU4 de l'éruption plinienne du Vésuve en 79 avant J.-C. (Gurioli et al. 2005 ; modifié).

1.7.2.d Données quantitatives extraites des distributions de taille de vésicules

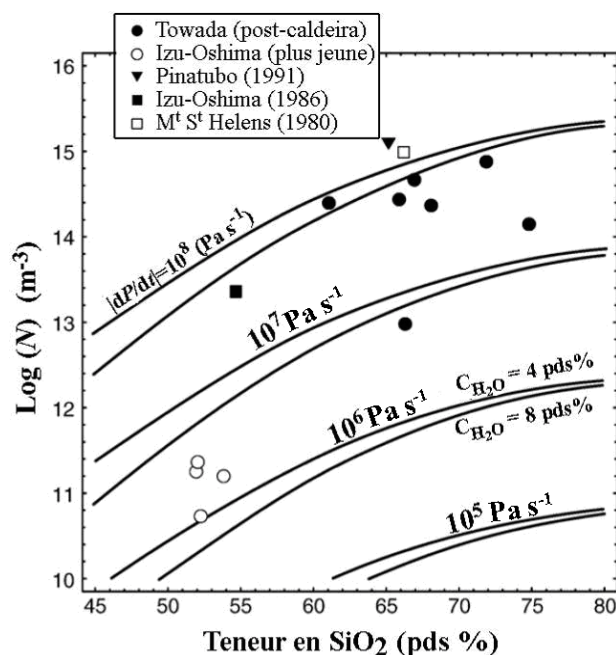
Comme nous l'avons vu précédemment, certains paramètres de la vésiculation peuvent être extraits des distributions de tailles de vésicules. Ainsi Mangan et al. (1993) ont extraits des distributions numériques de vésicules de scories basaltiques du Kilauea à Hawaï (Pu'u 'O'o-Kupaianaha) des taux de nucléation et de croissance des bulles. Leurs distributions de type exponentiel permettent en effet d'extraire facilement le nombre total de bulles et le taux de croissance de celles-ci à condition qu'une estimation indépendante du temps disponible à la croissance soit acquise (Figure 22c). Le taux de nucléation est déterminé par $J = N_0 G$. Les taux de nucléation et de croissance estimés sont respectivement de $3,6 \times 10^7 \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1} (\pm 8,9)$ et de $3,2 \mu\text{m s}^{-1} (\pm 0,8)$. Ces paramètres sont extractibles des distributions lorsque celles-ci ne sont que très peu affectées par les processus tels que la coalescence ou le dégazage, ce qui est

le cas dans les scories basaltiques étudiées par Mangan et al. (1993). Lorsque ces processus interviennent, il est difficile de retrouver la forme de la distribution originale et donc d'en extraire des informations quantitatives.

Klug et Cashman (1994) ont tenté de calculer ces mêmes taux dans des ponces issues de l'éruption du Mont Saint Helens en 1980. Etant donné que dans leurs échantillons, la coalescence était assez avancée, elles ont virtuellement séparé les vésicules connectées (celles dont les parois n'étaient pas totalement rétractées), en retraçant des parois entre ces vésicules, et ont ainsi obtenu la distribution juste avant le début de la coalescence. En estimant que le diamètre moyen des vésicules est égal à $3G\tau$ (Mangan et al. 1993) et en estimant de manière indépendante le temps disponible pour la croissance (τ , obtenu par modélisation de la vitesse d'ascension du magma), elles ont pu déterminer le taux de croissance, variant de 1,2 à $5,2 \mu\text{m s}^{-1}$ selon le temps disponible pour la croissance pris en compte, ce qui donne des taux de nucléation de $2,1$ à $4,9 \times 10^{12} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$.

Les calculs analytiques proposés par Toramaru (2006) permettent d'obtenir les taux de décompression à partir de la densité numérique totale de vésicules. Si ce modèle a été appliqué à des échantillons expérimentaux (Cluzel et al. 2008), il n'a pas encore été appliqué de façon étendue à des échantillons naturels. Toramaru (2006) l'a appliqué pour 14 densités numériques totales de vésicules d'éruptions pliniennes disponibles dans la littérature. Ses calculs montrent que pour une même valeur de teneur en SiO_2 , une augmentation de la densité numérique de vésicules implique une augmentation du taux de décompression. Les taux de décompression obtenus pour des éruptions pliniennes (Towada, Pinatubo, Mont Saint Helens) sont de l'ordre de 10 à plus de 100 MPa s^{-1} si on considère une nucléation homogène (Figure 34). Toramaru (2006) suggère que la nucléation pourrait s'accompagner d'une vague de raréfaction qui engendrerait les forts taux de décompression calculés à partir des densités numériques dans les échantillons pliniens. Comme nous le verrons par la suite (Chapitres 3 et 4 ; Giachetti et al. 2010), il y a des évidences visuelles de nucléation hétérogène dans les échantillons vulcaniens de la Soufrière Hills. Le modèle de Toramaru permettant d'obtenir le taux de décompression à partir de la densité numérique de vésicules, (en changeant la valeur de la tension de surface pour prendre en compte la nucléation hétérogène, comme nous l'avons vu précédemment) n'avait pas encore été appliqué sur ce type d'échantillons.

Figure 34. Taux de décompression obtenus par calcul en fonction de la densité numérique de vésicules, des teneurs totales en SiO_2 et en H_2O , pour 14 échantillons provenant d'éruptions pliniennes (Toramaru 2006 ; modifié). A teneur en SiO_2 égale, une densité numérique de vésicules plus élevée implique un taux de décompression plus fort. A densité numérique de vésicules égale, une teneur en SiO_2 plus faible implique un taux de décompression plus fort. La teneur en eau a une faible influence sur le taux de décompression calculé.



I.8. Synthèse et ouverture sur la problématique de la thèse

Nous avons vu que les études texturales des échantillons naturels permettaient d'obtenir des informations qualitatives mais aussi quantitatives sur le processus de vésiculation du magma lors de sa remontée depuis la chambre vers la surface, à travers le conduit. Ces études concernent soit des éruptions faiblement explosives, impliquant un magma mafique de type basaltique, soit des éruptions très explosives, souvent pliniennes, et qui mettent en jeu des magmas plus différenciés, de type dacitique ou rhyolitique.

La plupart des études concernant les éruptions pliniennes mettent en avant l'intervention d'un événement de nucléation plus ou moins rapide (parfois continu), suivi d'une croissance des bulles par diffusion et par décompression, puis d'une coalescence des vésicules rendant le magma perméable et permettant ainsi au gaz de s'échapper. Les distributions de volume des vésicules sont souvent bimodales (parfois polymodales) et les distributions numériques présentent en général deux tendances, une forme exponentielle pour les vésicules les plus petites et une forme en loi de puissance pour les plus grandes tailles. Les taux de décompression calculés à partir des densités numériques, et en considérant une nucléation homogène, sont de l'ordre de 10 à $>100 \text{ MPa s}^{-1}$.

Cependant, nous avons vu que les informations quantitatives qui peuvent être extraites des distributions de taille de vésicules requéraient la connaissance de paramètres tels que le temps disponibles pour la croissance, la durée de l'éruption, la composition chimique du magma mis en jeu, etc. Il a aussi été montré l'importance des observations simples des

échantillons, à toutes les échelles, permettant de justifier telle ou telle hypothèse. De plus, afin de renforcer la validité des données obtenues, il est utile de pouvoir confronter les résultats obtenus à des observations directes de l'éruption ou des enregistrements géophysiques et géochimiques. De ce fait, une éruption très bien contrainte par ce type d'observations et d'enregistrements va permettre d'affiner les résultats des analyses texturales et ainsi mieux contraindre le processus de vésiculation du magma dans le conduit.

C'est en partie pour cette raison que nous avons choisi d'appliquer les différentes méthodes explicitées ci-dessus aux produits des explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills, qui ont eu lieu en 1997 à Montserrat. En plus du fait que ces explosions ont été observées, filmées et sont très bien documentées, il n'existait avant le début de cette thèse que très peu d'analyses texturales concernant les produits des éruptions vulcaniennes. Il était donc intéressant de savoir si ces textures et les processus de vésiculation qu'elles impliquent, se rapprochent ou non des produits pliniens et si la même dynamique de conduit pouvait être invoquée.

Le chapitre suivant présente le cadre géologique de notre étude. Après avoir introduit le cadre tectonique régional de l'île de Montserrat, nous retraçons l'éruption de la Soufrière Hills depuis son initiation en juillet 1995. Enfin, nous détaillons le déroulement d'une explosion vulcanienne « moyenne » et rassemblons les modèles de conduit proposés pour expliquer son fonctionnement et les questions qui restent en suspens.

II. Contexte géologique de l'étude

II.1. Contexte géologique régional

L'île de Montserrat se trouve sur la petite plaque tectonique Caraïbe, située au milieu des plaques nord et sud américaines, de la plaque Cocos et de la plaque Nazca (Figure 35). Le mouvement de la plaque Caraïbe par rapport aux plaques américaines se fait vers l'est avec des vitesses de l'ordre de 2 à 4 cm an⁻¹, les déplacements étant accommodés au nord et au sud par des décrochements majeurs (Minster et Jordan 1978 ; Pindell et Barrett 1990). A l'ouest, la limite de la plaque Caraïbe est bien définie par la fosse d'Amérique Centrale, zone de subduction très active et quasiment continue sur plus de 1 000 km. Le centre de la plaque Caraïbe est constitué d'un large domaine océanique divisé en deux grands bassins, celui de Colombie et celui du Venezuela. Enfin, à l'est, la plaque est délimitée par la subduction du domaine océanique atlantique, se faisant à une vitesse d'environ 2 cm an⁻¹ vers l'ouest (Minster et Jordan 1978).



Figure 35. Contexte tectonique régional de la plaque Caraïbe.

II.2. L'arc volcanique des Petites Antilles

La zone de subduction actuelle à l'est de la plaque Caraïbe, liée au passage de la plaque atlantique sous cette dernière, se raccorde à la faille transformante de Porto Rico. Un prisme d'accrétion est associé à cette subduction. Il est très développé au sud où il affleure et crée l'île de la Barbade (Figure 36). Cette subduction a été à l'origine de la création de l'arc volcanique des Petites Antilles, formé d'une vingtaine d'îles volcaniques depuis les îles de Saba et Anguilla au nord, jusqu'à l'île de Grenade au sud. L'arc, d'une longueur d'environ 850 km, se divise en un arc externe (E sur la Figure 36, ancien) et un arc interne (I sur la Figure 36, récent), réunis dans leur partie sud mais se séparant nettement au niveau de la Martinique où se produit une flexure de l'arc d'environ 50° (Figure 36). Au nord de la flexure, l'angle de la plaque subductée est de 50-60° jusqu'à 210 km de profondeur et de 45-50° au où la plaque descend jusqu'à 170 km de profondeur (Stein et al. 1982 ; Wadge et Sheperd 1984).

Etant donné le faible taux de convergence des deux plaques (2 cm an⁻¹), les Petites Antilles présentent une activité volcanique plus faible comparée à d'autres arcs volcaniques similaires (Boudon 1987 ; Wadge 1984). Les premières formations volcaniques aériennes de l'arc externe ont débuté il y a 40 Ma (Saint Barth) pour se terminer vers 28 Ma (Andrieff et al. 1987 ; Westercamp et Tazieff 1980) tandis que l'activité de l'arc interne commencée il y a 22 Ma (Bouysse et al. 1985) se poursuit encore actuellement. L'arc interne s'étend de la Grenade au sud à l'île de Saba au nord et englobe 17 volcans et champs de solfatares actifs (Robson et Tomblin 1966). Parmi ces 17 sites, certains volcans ont connu des éruptions magmatiques ou/et phréatiques historiques violentes (Robson et Tomblin 1966 ; Westercamp et Tazieff 1980 ; Boudon 1987). C'est le cas par exemple de la Montagne Pelée à la Martinique (1792, 1851, 1902-1903, 1929-1932), de la Soufrière de S^t Vincent (1718, 1812, 1902-1903, 1971, 1979), de la Soufrière de la Guadeloupe (1400, 1680, 1696, 1797-1798, 1836-1837, 1903, 1956, 1976-1977) ou encore de la Soufrière Hills de Montserrat (~1650, 1995- toujours en cours en 2010).

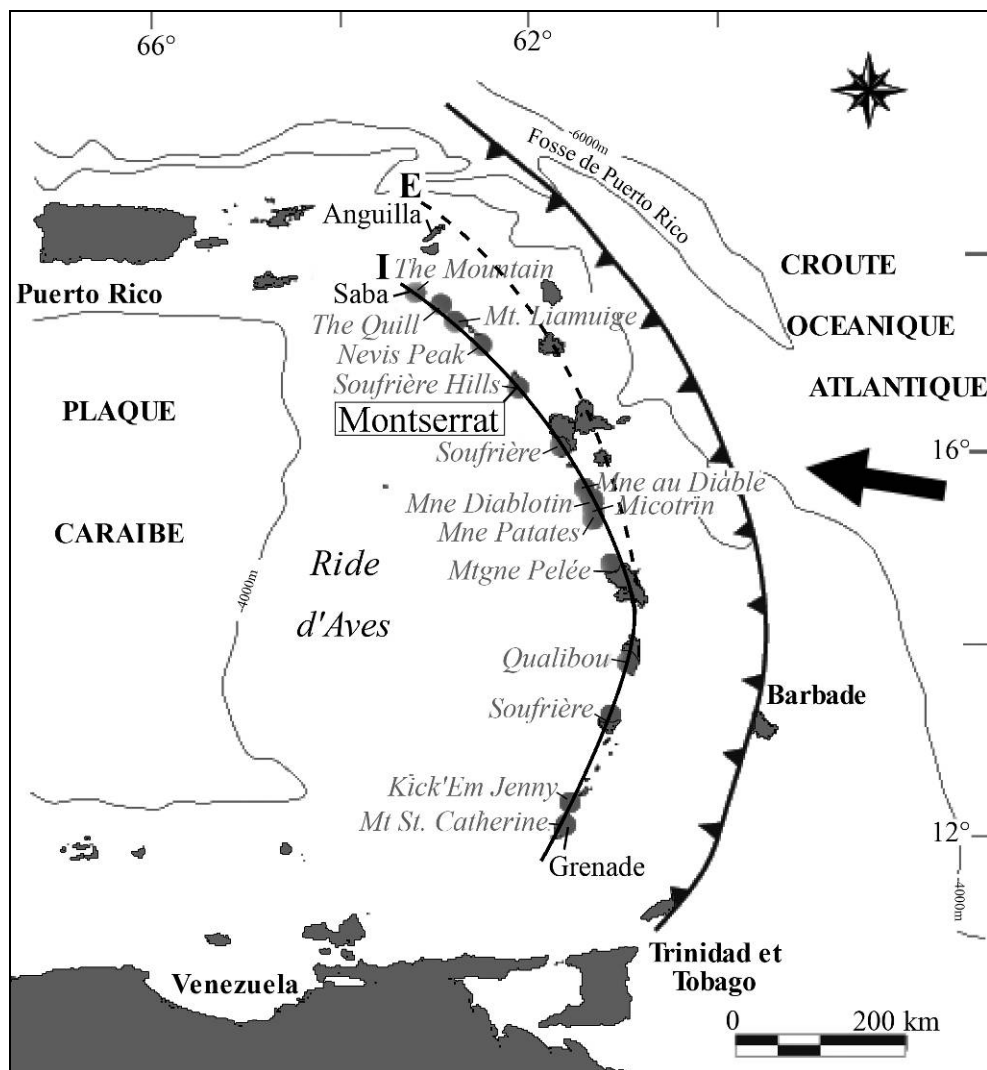


Figure 36. Contexte tectonique de l'arc des Petites Antilles. L'arc volcanique externe (E, plus ancien) est figuré en pointillés tandis que l'arc interne (I, plus récent) figure en trait plein, la zone de subduction étant localisée plus à l'est par le trait noir épais. Les volcans principaux sont indiqués par des ronds gris et leurs noms sont inscrits en gris italique.

II.3. L'île de Montserrat

II.3.1 Géographie et Histoire

Montserrat est une petite île dépendant du Royaume-Uni, située à environ 55 km au Nord de la Guadeloupe. Elle mesure 16 km du nord au sud et 10 km d'est en ouest. Baptisée Montserrat lors de sa découverte par Christophe Colomb en 1493 en référence à une montagne proche de Barcelone, l'île est passée aux mains des anglais en 1632 suite à l'installation d'un groupe d'irlandais. Jusqu'en 1995, elle vivait surtout du tourisme et était même surnommée l'île d'émeraude des Caraïbes. Elle accueillait alors environ 12 000 habitants et sa capitale Plymouth était célèbre pour ses studios d'enregistrements. Suite à l'éruption de la Soufrière Hills en juillet 1995, plus de 8 000 personnes ont quitté l'île, se

réfugiant notamment sur l'île voisine d'Antigua ou au Royaume-Uni. La capitale Plymouth a été, depuis, complètement ensevelie sous les dépôts volcaniques, et l'essentiel de l'administration et du pouvoir se trouve maintenant dans la partie Nord de l'île, le Sud étant interdit d'accès la plupart du temps. En 2006, l'île ne comptait plus qu'à peine 5 000 habitants, la poursuite de l'éruption empêchant tout retour des populations en toute sécurité.

II.3.2 Géologie générale de l'île de Montserrat

II.3.2.a *Les différents centres volcaniques*

C'est à partir de 1938 et des travaux de cartographie et d'analyses chimiques de Mc Gregor, que la géologie de l'île de Montserrat commence à être appréhendée. Suivront les travaux de Robson et Tomblin (1966) qui mettront notamment en évidence l'existence d'une activité sismique (1966-1967) et solfatarique de la Soufrière Hills, puis les datations effectuées par Rea (1974), Briden et al. (1979), Wadge et Isaacs (1988) et enfin, une revue complète par Harford et al. (2002) de l'évolution volcanique de l'île sur la base de nouvelles datations à l'aide de la méthode $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$. Ces différentes études ont mis en évidence l'existence de trois ensembles volcaniques distincts qui se sont mis en place depuis 2,6 Ma (Harford et al. 2002). Du nord au sud et du plus ancien au plus récent, on trouve les centres volcaniques de Silver Hills, Center Hills et la Soufrière Hills qui peut elle-même être subdivisée en deux ensembles distincts, celui de South Soufrière Hills et celui de la Soufrière Hills à proprement dit (Figure 37).

Silver Hills, à l'extrémité nord de l'île, est constitué de laves altérées et de produits pyroclastiques remaniés d'andésite à deux pyroxènes (Rea 1974) et a probablement été actif entre $2,58 \pm 0,06$ Ma et $1,16 \pm 0,05$ Ma (Harford et al. 2002)

Centre Hills est situé au centre de l'île, au sud de Silver Hills (Figure 37) et est formé de laves et de dépôts pyroclastiques. Cet ensemble est postérieur à Silver Hills et aurait été actif entre 954 ± 12 ka et 550 ± 23 ka (Harford et al. 2002). Les dépôts de Center Hills sont aussi andésitiques à deux pyroxènes même si des andésites plus différenciées à hornblende et hypersthène sont présentes. Morphologiquement on peut distinguer les restes d'anciens dômes présents sous formes de pics d'andésites massives et des produits pyroclastiques formant des reliefs plus doux sur les flancs.

L'ensemble South Soufrière Hills occupe l'extrême sud de l'île et est constitué de laves et de retombées pyroclastiques dont l'épaisseur atteint jusqu'à 200 m dans la White River. Ces dépôts de retombées sont essentiellement des cendres et des lapilli andésitiques

(Rea 1974), surmontés par des lits de lapilli et de scories basaltiques d'une épaisseur de quelques centimètres à une quinzaine de mètres. Au niveau du sommet de South Soufrière Hills on peut reconnaître au moins quatre structures en fer à cheval, interprétées comme étant des cicatrices d'effondrement de flancs. Les âges $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ obtenus sur ces dépôts varient peu (~ 130 ka, Harford et al. 2002).

La Soufrière Hills à proprement dit est située au nord de cet ensemble de South Soufrière Hills et au sud de Centre Hills (Figure 37), s'étendant sur une surface de 35 km^2 (Wadge et Isaacs 1988). Ce volcan est formé en son centre par quatre dômes andésitiques ; Gages Mountain daté entre 149 ± 3 et 223 ± 7 ka, Galway's Mountain daté entre 130 ± 5 et 121 ± 4 ka, Chance's Peak daté à 39 ± 13 ka et Perche's Peak daté entre 23 ± 3 et 32 ± 4 ka (Harford et al. 2002). Ces dômes sont alignés sur une direction N115, correspondant à une grande zone de faiblesse crustale (Wadge et Isaacs 1988). L'ensemble de ces quatre dômes est recoupé par une cicatrice d'effondrement de flanc (English Crater) datée à $3\,950 \pm 70$ ans par Roobol et Smith (1998) et dans laquelle a poussé le dôme de Castle Peak. Un talus comprenant trois unités discordantes de dépôts d'écoulements pyroclastiques et de lahars, et entaillé de vallées profondes est associé à ces dômes (Robson et Tomblin 1966 ; Rea 1974 ; Roobol et Smith 1998 ; Harford et al. 2002). L'unité la plus profonde de ce talus est âgée de 177 ± 5 à 174 ± 3 ka tandis que la plus superficielle donne un âge entre 38 ± 8 et 24 ± 1 ka (Harford et al. 2002). Deux petites unités reposant sur ce talus sont attribuées à la formation d'English Crater et de Castle Peak il y a 770-200 ans (Roobol et Smith 1998).

Des dépôts d'avalanches de débris ont été mis en évidence par des campagnes de géophysique marine et des analyses des bathymétries et topographies autour de l'île de Montserrat (Deplus et al. 2001 ; Le Friant et al. 2004). Ces dépôts ont une extension de 20 à 120 km^2 et se trouvent sur les flancs est, sud et ouest de l'île. Ils sont caractérisés par la présence de méga blocs de 100 à 400 m de large et de 20 à 40 m de haut et s'étendent jusqu'à 15 km autour de l'île. Le dépôt à l'est est probablement relié à la formation d'English Crater qui a été interprété comme étant une structure d'effondrement (Wadge et Isaacs 1988) formée il y a environ 4 000 ans (Roobol et Smith 1998), et pour laquelle il existe des dépôts d'avalanche de débris sur l'île (Boudon et al. 1998). Le dépôt à l'ouest est lui interprété comme étant le résultat d'une déstabilisation de la partie sous-marine de l'île (Deplus et al. 2001). Une récente étude (Le Friant et al. 2009) a montré qu'entre 1995 et 2005, 75 % du volume émis par l'éruption de la Soufrière Hills s'était déposé en mer (soit au moins $\sim 482 \times 10^6 \text{ m}^3$ en mai 2005).

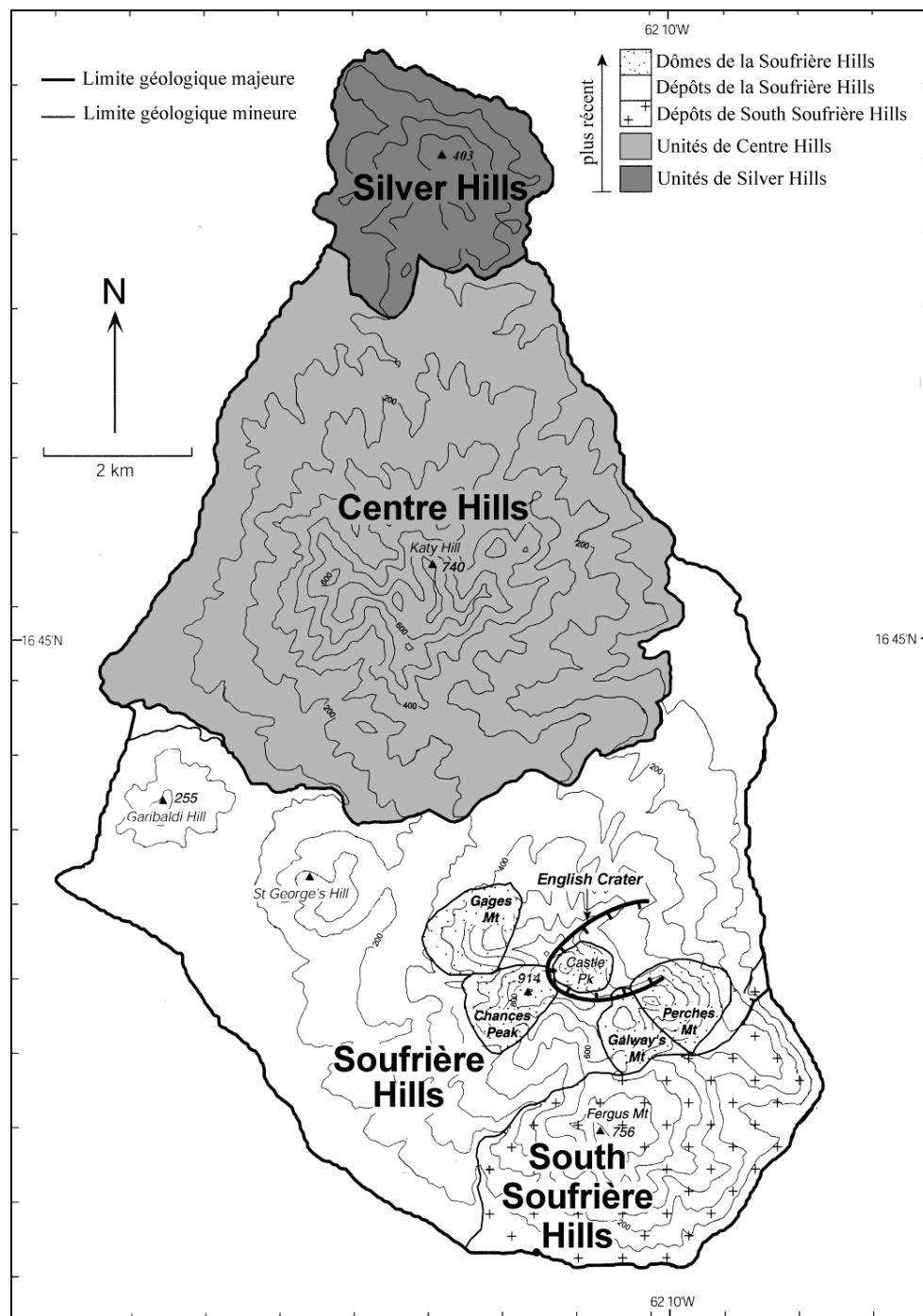


Figure 37. Carte géologique de Montserrat (Harford et al. 2002, modifiée). Figurent les trois ensembles volcaniques principaux (Silver Hills, Centre Hills et de South Soufrière Hills/Soufrière Hills), la subdivision entre South Soufrière Hills et Soufrière Hills, les cinq dômes associés à la Soufrière Hills ainsi que la cicatrice d'English Crater. Les courbes de niveaux sont espacées de 100 m.

II.3.2.b La pétrologie

Les roches émises par les différents centres éruptifs de l'île au cours de son histoire appartiennent toutes à une série calco-alkaline. On retrouve globalement des basaltes et des andésites. Les basaltes ont une paragenèse composée majoritairement de phénocristaux de

plagioclase zonés (An_{90-70}), d'olivine (Fo_{75-60}) et de clinopyroxène. Ils sont présents au sud-ouest de South Soufrière Hills sous forme de coulées ou de cônes de cendres. La majorité des roches sont des andésites comprenant 45 à 55 %pds de phénocristaux (Harford et al. 2002). Ces andésites peuvent être divisées en deux groupes (Rea 1974) :

- Les andésites à deux pyroxènes caractérisées par la présence d'augite et d'hypersthène en proportions identiques (Robson et Tomblin 1966) et l'existence d'olivine dans les termes les plus basiques ($53\% \text{pds} < SiO_2 < 57\% \text{pds}$). Ces andésites se trouvent au nord et au sud, dans toutes les unités.
- Les andésites à hornblende et hypersthène, plus différenciées (entre 59 et 63 %pds de SiO_2) qui sont caractérisées à la fois par la présence d'hornblende brune et de plagioclases fortement zonés (cœur calcique An_{85-70} , bord sodique An_{50-40}), mais aussi par l'absence d'augite (Rea 1974). On trouve ces andésites différenciées au niveau de Centre Hills (Robson et Tomblin 1966) et au niveau des dômes les plus récents de la Soufrière Hills.

La transition entre les deux types d'andésites au niveau de l'ensemble South Soufrière Hills/Soufrière Hills semble s'être produite vers 130 ka, au moment du volcanisme mafique de l'ensemble South Soufrière Hills (Harford et al. 2002).

II.4. Résumé du contexte géologique

L'île de Montserrat est, d'un point de vue volcanique, une île typique de l'arc des Petites Antilles. Ses éruptions sont caractérisées principalement par la formation et la destruction de dômes de lave andésitique, précédées et/ou accompagnées d'éruptions explosives produisant des dépôts pyroclastiques, comme pendant l'éruption de la Montagne Pelée en 1902 sur l'île de la Martinique (Rea 1974 ; Wadge et Isaacs 1988). Nevis Peak (Nevis), Mount Misery (S^t Kitts) ou encore La Soufrière (S^t Vincent) sont d'autres exemples de volcans ayant produit des dômes dans l'arc volcanique des Petites Antilles.

Wadge et Isaacs (1988) voyaient en la Soufrière Hills de Montserrat un volcan potentiellement dangereux, et ce, malgré l'absence d'éruption historique. Ils proposaient même un scénario d'éruption en cas de reprise d'activité, impliquant la formation d'un dôme dans la zone des cinq dômes de la Soufrière Hills, qui serait accompagnée de phases explosives et de coulées pyroclastiques et précédée de petites explosions phréatiques ou phréatomagmatiques. En 1995, après trois ans d'augmentation de la sismicité, la Soufrière Hills entre en éruption.

II.5. L'éruption actuelle de la Soufrière Hills (depuis 1995)

Afin de suivre visuellement la chronologie de l'éruption dans sa globalité, une frise est fournie en Figure 38 et retrace les grands événements de l'éruption, illustrés parfois par des photographies. La plupart des clichés proviennent du site internet du Montserrat Volcano Observatory (<http://www.mvo.ms>).

L'éruption de la Soufrière Hills a débuté le 18 Juillet 1995 par une explosion phréatique (Robertson et al. 2000; Gardner et White 2002), suivant trois années de sismicité croissante sous l'île. Cette éruption est liée principalement à la formation et à l'effondrement de dômes de lave andésitique, produisant des coulées pyroclastiques de blocs et de cendres (Kokelaar 2002 ; Sparks et Young 2002). La première apparition d'un dôme s'est produite le 15 novembre 1995 dans l'English Crater, suivant une première arrivée de magma juvénile en surface en septembre.

Une première période d'extrusion de lave se produisit de fin novembre 1995 aux débuts de l'année 1998, l'émission de lave visqueuse ayant lieu essentiellement dans le dôme créé par l'éruption phréatique de juillet 1995. Durant cette période, le dôme connut de nombreuses phases d'effondrements, créant des coulées de blocs et de cendres importantes qui atteignirent parfois la mer (Young et al. 1998 ; Watts et al. 2002). L'activité explosive du volcan se traduisit pendant cette période par une éruption magmatique subplinienne (le 17 septembre 1996) suivant un effondrement majeur du dôme et par deux séries d'explosions vulcaniennes en août et en septembre-octobre 1997 suivant aussi chacune des épisodes d'effondrements du dôme. Ces explosions vulcaniennes, qui constituent l'objet principal de cette thèse, sont détaillées dans le chapitre suivant. Le 26 décembre 1997 se produisit un blast latéral conduisant à la destruction explosive du dôme et à la formation d'un nouveau lobe jusqu'en mars 1998. Cette première période d'extrusion aura conduit à l'émission au total de plus de $240 \times 10^6 \text{ m}^3$ DRE (Dense Rock Equivalent = volume corrigé de la présence de vésicules) de magma (Young et al. 1998 ; Sparks et al. 1998). Elle a été suivie jusqu'à la fin 1999 par un épisode d'activité résiduelle, sans extrusion de lave, mais durant lequel le dôme s'effondra de nombreuses fois et des explosions de taille mineures à modérées ont eu lieu.

Une seconde période d'extrusion de lave commença en novembre 1999 conduisant à la croissance d'un dôme jusqu'en juillet 2003. Durant cette nouvelle phase d'extrusion, trois effondrements significatifs du dôme se sont produits, en mars 2000, en juillet 2001 et en juillet 2003, ce dernier épisode constituant, à l'heure actuelle, le plus gros effondrement de

dôme jamais observé. Cette seconde phase de croissance fut suivie d'une période de relative quiétude, avec tout de même trois phases d'activité élevée (mars-mai 2004, avril 2005 et juin-juillet 2005) durant lesquelles des panaches de cendres et de vapeur ainsi que des coulées pyroclastiques ont été émis occasionnellement.

La troisième phase d'activité de dôme a débuté en août 2005, avec une reprise de l'extrusion de lave visqueuse, et se poursuit actuellement. Cette phase a connu (jusqu'au moment de l'écriture) un seul effondrement majeur du dôme en mai 2006 et depuis cette date l'extrusion continue, ponctuée d'effondrements partiels. Le dôme a notamment connu un regain de croissance entre décembre 2008 et janvier 2009.

Récemment, du 5 au 7 octobre 2009 la Soufrière Hills a produit treize panaches de cendres et une nouvelle extrusion de dôme s'est produite au-dessus de la vallée de la White River au sud mais aussi au nord vers la Tyre's Ghaut (cf. Figure 39 pour localisation). Depuis le 23 octobre, l'activité de la Soufrière Hills est en récession, avec une baisse du taux d'extrusion de la lave. Les dernières dépêches du Montserrat Volcano Observatory montrent que l'activité éruptive de la Soufrière Hills reste élevée. Dans la deuxième semaine de novembre 2009, pas moins de 429 signaux d'avalanches de blocs ont été enregistrés et le volume des coulées pyroclastiques a augmenté. Tous ces écoulements pyroclastiques s'orientent principalement à l'ouest et en particulier vers Gages Valley, Spring Ghaut et St George Hill. Le nouveau dôme en croissance est bien visible et souvent couvert d'incandescence.

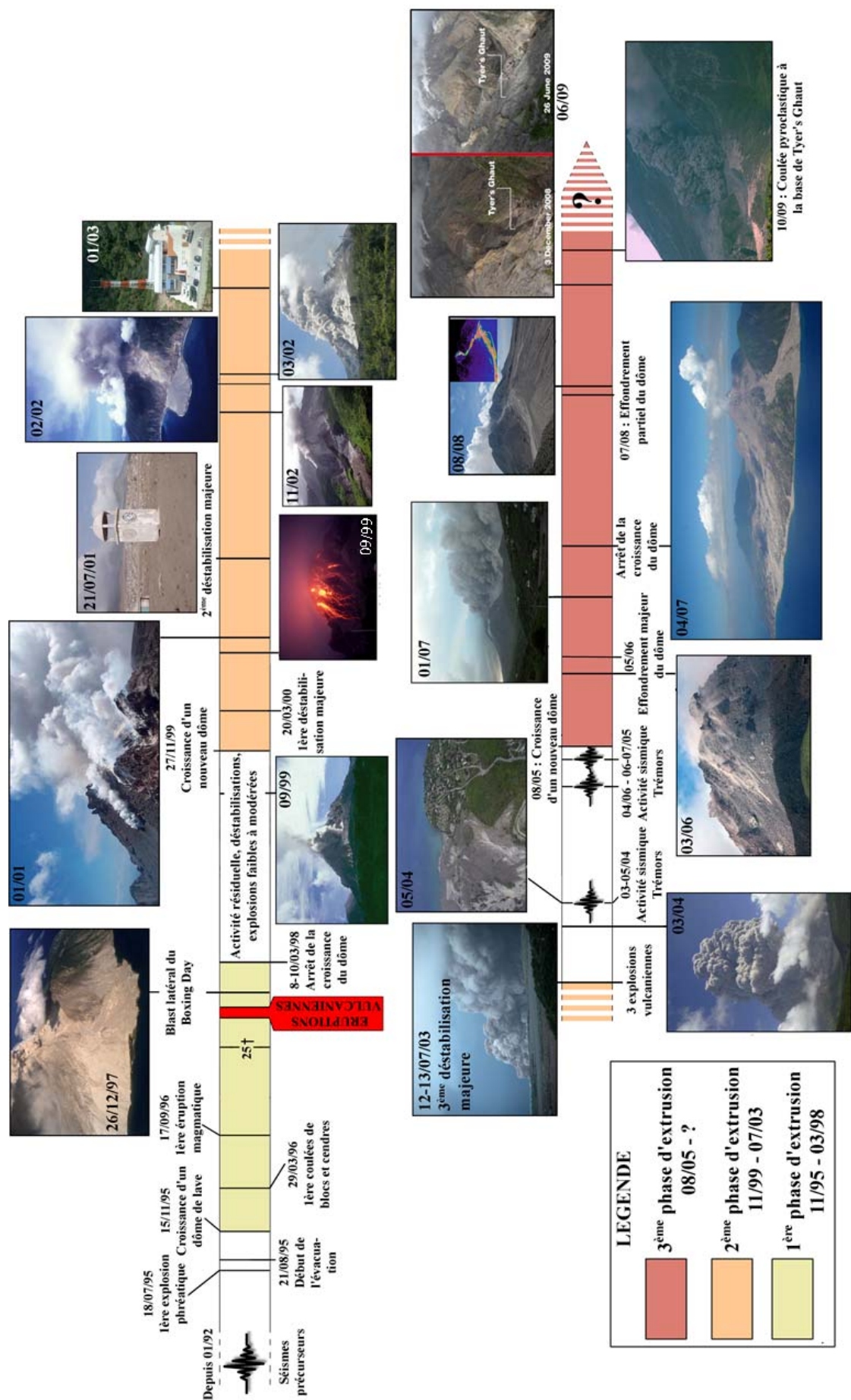


Figure 38. Chronologie, à l'échelle, de l'éruption en cours de la Soufrière Hills de Montserrat débutée en juillet 1995.

II.6. Les explosions Vulcaniennes de 1997

II.6.1 L'éruption vulcanienne

Le terme vulcanien a été utilisé pour la première fois par Mercalli (1907) pour décrire l'éruption de Vulcano qui eut lieu en 1888-1890 dans les îles éoliennes en Italie. Depuis lors, de nombreuses éruptions historiques ont été définies comme vulcaniennes ; celle du Sakurajima au Japon depuis 1955 (Morrissey et Mastin 2000), celle de l'Arenal au Costa-Rica en 1968 (Fundali et Melson 1971 ; Melson et Saenz 1973), l'éruption du Ngaurohoe en 1975 en Nouvelle-Zélande (Nairn et Self 1978), la phase initiale de l'éruption du Pinatubo aux Philippines en 1991 (Hobblit et al. 1996), l'éruption du Galeras en Colombie en 1992 (Stix et al. 1997), les deux phases d'explosions à la Soufrière Hills en 1997 (Druitt et al. 2002), ou encore l'éruption du Guagua Pichincha en Equateur en 1999 (Hall 2001 ; Wright et al. 2007).

Les éruptions vulcaniennes sont souvent caractérisées par des explosions courtes (quelques minutes à quelques heures) et séparées dans le temps par des intervalles de plusieurs secondes à plusieurs jours (Morrissey et Mastin 2000) et peuvent se produire aussi comme précurseur d'éruption plus soutenue (subplinienne voire plinienne, Nairn et Self 1978), comme ce fut le cas au Pinatubo en 1991. Les éruptions vulcaniennes impliquent souvent des magmas basaltiques ou andésitiques, jusqu'à des magmas dacitiques. Chaque explosion produit en moyenne 10^5 à 10^9 kg de magma (dont une fraction significative est souvent non-juvénile, Self et al. 1979), qu'elle expulse à des vitesses dépassant les 400 m s^{-1} (Morrissey et Mastin 2000) témoignant de la pressurisation de gaz dans le conduit (Chouet et al. 1994 ; Cruz et Chouet 1997 ; Arciniega-Ceballos et al. 1999). Ces explosions produisent des panaches atteignant de plusieurs kilomètres de hauteur pour une seule explosion (Druitt et al. 2002) jusqu'à 20 km pour des explosions répétées (Morrissey et Mastin 2000). Ce type d'éruptions peut générer des coulées et des déferlantes pyroclastiques, des coulées de blocs et cendres, des retombées distales fines et des retombées proximales sous forme de blocs balistiques, souvent en croûte de pain (e.g. Vougioukalakis 1995). Ces bombes en croûte de pain, caractéristiques des éruptions vulcaniennes, ont été étudiées en détails pour les explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills (Chapitre 5).

II.6.2 Chronologie des explosions vulcaniennes de 1997 à Montserrat

En 1997, la Soufrière Hills a subi deux périodes d'activité vulcanienne (Kokelaar 2002 ; Sparks et Young 2002; Druitt et al. 2002), treize explosions ont eu lieu entre le 4 et le 12 août et soixante quinze entre le 22 septembre et le 21 octobre. Le détail de cette activité

vulcanienne est fourni dans l'article de Druitt et al. (2002) et la majorité des informations données dans les paragraphes suivants provient de ce travail.

II.6.2.a 1^{ère} série : les explosions du 4 au 12 août

La première explosion d'août 1997 fut précédée par un regain d'activité, à partir du 31 juillet, se manifestant par des cycles de déformation accompagnés d'une sismicité hybride importante d'une période de 9 à 12h (Druitt et al. 2002). Ces cycles de déformation aboutirent à une activité explosive de plus en plus importante, avec la production de petits panaches de cendres (entre 4,5 et 6 km de hauteur) et de petites coulées pyroclastiques à blocs et cendres d'environ 2 km de longueur, se propageant dans Gages Valley et Tuitt's Ghaut. Cette activité explosive ne cessa de croître les trois jours suivants, les panaches devenant plus importants et les coulées pyroclastiques plus volumineuses. Le 3 août 1997, au paroxysme d'un cycle de déformation, une succession de déstabilisations du dôme a conduit à la formation de coulées pyroclastiques à blocs et cendres dans Gages Valley. A 18h10, la capitale Plymouth fut sérieusement atteinte par une de ces coulées se propageant le long de Forth Ghaut.

La première explosion vulcanienne eut lieu le 4 août à 6h30 du matin et fut suivie par 10 autres explosions plus ou moins similaires, s'espçant dans le temps d'une durée de 9h50 à 12h37. Les deux dernières explosions de cette première série, de moindre importance, eurent lieu les 11 et 12 août, suivant l'explosion précédente de 62h47 et 22h35 respectivement (Tableau 5). Toutes ces explosions ont été accompagnées d'un panache atteignant de 3 à 13,7 km de hauteur et de coulées pyroclastiques se propageant à chaque fois dans presque toutes les vallées et ravines entourant le cratère : Tar River Valley, White's Ghaut, Tuitt's Ghaut, Mosquito Ghaut, Tyre's Ghaut, Gages Valley et White River Valley (Figure 39). Ces treize explosions se sont produites dans un cratère circulaire, formé au sommet du dôme par les différents effondrements précédant les explosions et élargi au fur et à mesure de la succession d'explosions. Ce cratère avait un diamètre de 300 ± 20 m et une profondeur de 110 m environ. Le 10 août, entre deux explosions, il fut observé que l'extrusion se poursuivait au fond du cratère. A la fin des explosions, le 12 août, la lave continuait encore à s'extruder.

Tableau 5. Caractéristiques des 88 explosions survenues en août et septembre-octobre 1997 (Druitt et al. 2002, modifié). L'intervalle de temps donné est celui entre l'explosion précédente et le début de l'explosion considérée. La hauteur du panache est calculée à partir des données de la National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA), mais aussi à l'aide d'autres mesures fournies par les aéroports de Montserrat et de Trinidad, par des évaluations de la hauteur du sommet du panache depuis l'observatoire de Montserrat (MVO) et par l'utilisation de données provenant des images satellites GEOS (Bonadonna et al. 2002) sur la température du sommet du panache (S). Concernant les coulées pyroclastiques, un (x) indique la présence de coulée dans la vallée considérée et un (o) dénote son absence, un blanc indiquant une absence d'observation. Ta (Tar River Valley); W (White's Ghaut); Tu (Tuit's Ghaut); M (Mosquito Ghaut); Ty (Tyre's Ghaut); G (Gages Valley); Wr (White River Valley).

Date	Heure locale	Intervalle (h:min)	Hauteur panache (km)	Coulées pyroclastiques						Date	Heure locale	Intervalle (h:min)	Hauteur panache (km)	Coulées pyroclastiques						
				Ta	W	Tu	M	Ty	G					Wr	Ta	W	Tu	M	Ty	G
4 Aug.	06:30		3.0								4 Oct.	18:27	9:54	12.2–13.7		x	x		x	
4 Aug.	16:43	10:13	4.6	x	x	x			x	x	5 Oct.	02:53	8:26	7.6–9.1						
5 Aug.	04:45	12:02	6.1–10.7	x	o	x			x	x	5 Oct.	10:41	7:48	7.6–9.1			x		x	x
5 Aug.	16:57	12:12	9.1	x	o	x	x	x	x	x	5 Oct.	18:41	8:00	5.3	x				x	x
6 Aug.	04:02	11:05	9.1–12.2	x	o	x	x	x	x	x	6 Oct.	02:44	8:03	6.9						
6 Aug.	14:36	10:34	11.0–12.2	x	o	x	x	o	x	x	6 Oct.	10:42	7:58	7.6	x		x		x	
7 Aug.	00:34	9:58				x	x	x	x		6 Oct.	17:50	7:08	<12.2	x	x	x	x	x	x
7 Aug.	12:05	11:31	12.2–13.7§	x	o	x	x	x	x	x	7 Oct.	04:06	10:16	>9.8	x			x	x	
7 Aug.	21:55	9:50	9.8								7 Oct.	16:02	11:56	13.7	x		x		x	x
8 Aug.	10:32	12:37	9.1–10.7	x	x	x	x	x	x	x	8 Oct.	03:47	11:45	<9.1–10.7						
8 Aug.	20:51	10:19	12.2								8 Oct.	15:10	11:23	~12.2	x	x	x	o	x	
11 Aug.	11:38	62:47	11.0								9 Oct.	03:03	11:53	10.1	x	x	x		x	
12 Aug.	10:12	22:35									9 Oct.	12:32	9:29	12.2	x	x	x		x	x
											10 Oct.	04:13	15:41	12.5	x	x				
22 Sep.	00:57		>9.1							o	10 Oct.	18:40	14:27	9.4	x	x	x		x	x
22 Sep.	10:45	9:48	10.7–12.2	o	o	x			x	o	11 Oct.	17:57	23:17	6.1–7.6	x		x		x	x
22 Sep.	20:42	9:57	9.1–10.7						x	o	12 Oct.	07:55	13:58			x			x	
23 Sep.	07:23	10:41	10.7–12.2						x	o	12 Oct.	22:24	14:29			x		x	x	
24 Sep.	00:34	17:11	~7.6						x	x	13 Oct.	09:32	11:08	>4.6			x		x	x
24 Sep.	10:54	10:20	12.2	x		x			x	o	13 Oct.	15:24	5:52				x		x	x
24 Sep.	17:16	6:22				x			x	o	14 Oct.	01:36	10:12							
25 Sep.	03:54	10:38								o	14 Oct.	13:48	12:12					x	x	
25 Sep.	11:09	7:15	12.2	x		x			x	o	14 Oct.	23:16	9:28							
25 Sep.	20:05	8:56	12.2			x			x	x	15 Oct.	05:47	6:31		o	o	o	o	o	o
26 Sep.	04:25	8:20	7.6								15 Oct.	08:33	2:46	3.1–7.6	o	o	o	o	o	o
26 Sep.	14:56	10:31	12.2§	x		x	x	x	x		15 Oct.	14:50	6:17	4.6–6.1			x		x	x
27 Sep.	00:01	9:05	12.2	o							15 Oct.	22:20	7:30	>4.6			x			
27 Sep.	09:46	9:45	<15.2§	o		x	x	x	x	o	16 Oct.	02:51	4:31	>3.7						
27 Sep.	17:15	7:29	13.7	o		x		x	x		16 Oct.	06:35	3:44	3.7–4.6	o	o	o	o	o	o
28 Sep.	04:28	11:13	13.7	o							16 Oct.	09:44	3:09	4.6			x			
28 Sep.	10:34	6:06		o		x		x	o	x	16 Oct.	14:20	4:36	3.1–4.6	x					
28 Sep.	23:03	12:29				x			x		16 Oct.	18:48	4:28	6.1						
29 Sep.	06:26	7:23	4.6–7.6								17 Oct.	04:01	9:13	7.6			x			
29 Sep.	11:23	4:57	10.7–12.2			x		o	x	x	17 Oct.	12:35	8:34	7.6–9.1			x			
29 Sep.	16:48	5:25	>12.2	x		x		x	x	x	17 Oct.	16:05	3:30	6.7			x		x	x
29 Sep.	21:57	5:09	12.2–13.7								17 Oct.	23:18	7:13	9.1						
30 Sep.	04:43	6:46	9.1–13.7								18 Oct.	06:48	7:30	4.6–7.6					x	
30 Sep.	17:44	13:01	<12.2	x		x	x	x			18 Oct.	15:17	8:29	12.2	x	x	x		x	x
1 Oct.	05:00	11:16	≪10.7								19 Oct.	05:13	13:56	<9.1	x		x		x	x
1 Oct.	11:34	6:34	~4.6	x		x		x	x		19 Oct.	21:27	16:14	5.5–9.1						
1 Oct.	17:40	6:06		x					x		20 Oct.	05:04	7:37	7.6						
2 Oct.	01:05	7:25		x							20 Oct.	15:13	10:09	9.1–10.7			x	x		x
2 Oct.	12:53	11:48	12.2	x		x		x	x	x	21 Oct.	11:39	20:26	>9.1	x		x		x	
2 Oct.	22:50	9:57	9.1			x		x	x		21 Oct.	19:02	7:23	10.7						
4 Oct.	08:33	33:43	11.0	x		x		x	x											

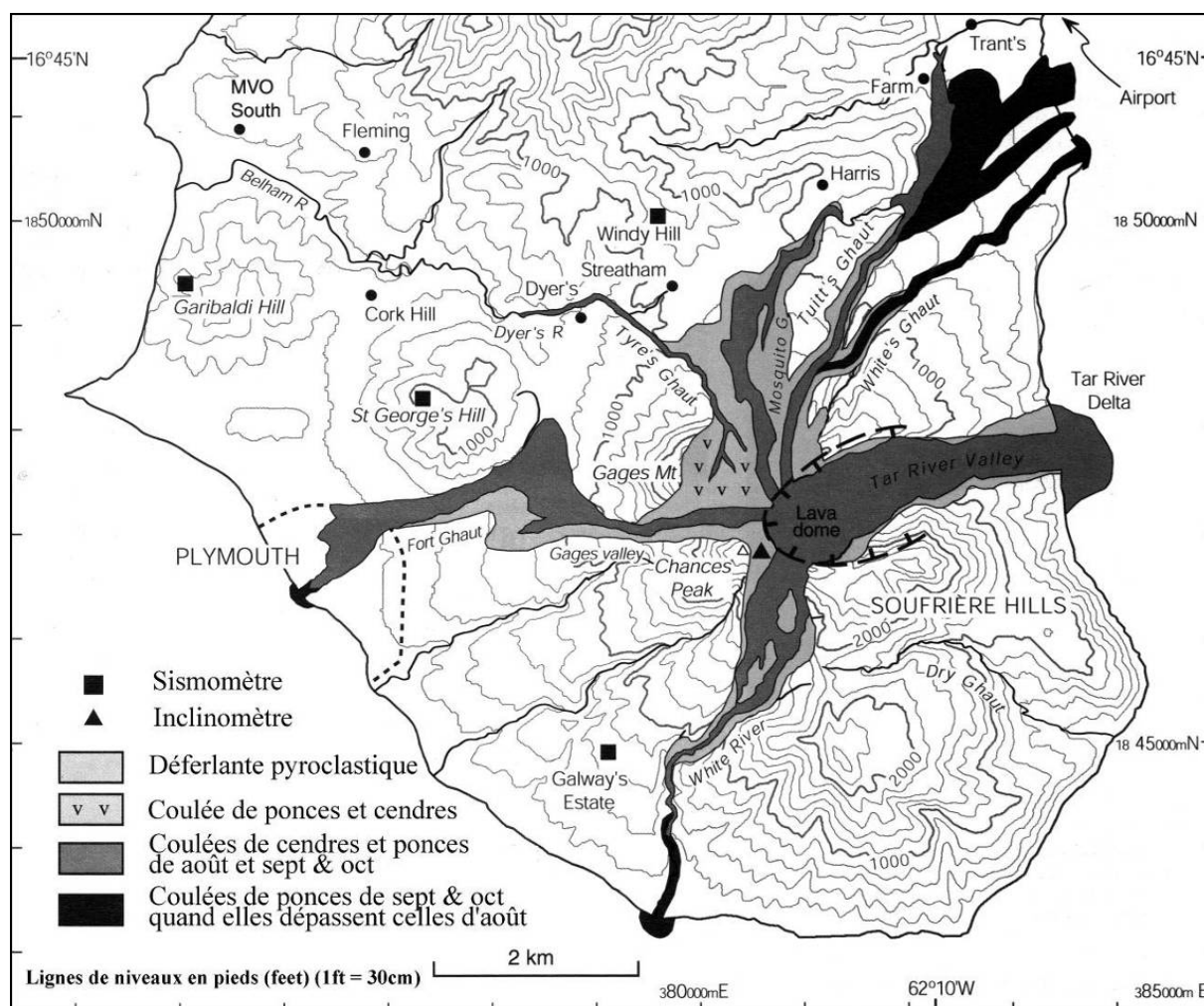


Figure 39. Carte des dépôts des explosions volcaniennes d'août et de septembre-octobre 1997 (Druitt et al. 2002, modifiée).

II.6.2.b L'activité entre le 12 août et le 22 septembre

La formation d'un nouveau dôme se poursuivait après les explosions volcaniennes d'août, formant notamment une extrusion en forme d'épine, d'une hauteur de 950 m le 13 août. Le 19 août, le dôme avait totalement rempli le cratère et retrouva le volume qu'il avait avant la première série d'explosions. L'extrusion de lave visqueuse se concentrait alors sur une surface de 150 m de diamètre au-dessus de Gages Valley. L'activité sismique accompagnant les premières explosions volcaniennes et caractérisée par des séismes hybrides importants, se poursuivait jusqu'au 19 août, avec des coulées pyroclastiques de blocs et de cendres partant du dôme et se propageant principalement sur la partie haute de Gages Valley.

De fin août à début septembre, les signaux liés aux chutes de pierre et aux coulées pyroclastiques dominèrent les enregistrements sismiques, l'activité se concentrant sur les flancs Ouest et Nord du dôme. Suivant un petit effondrement de $1 \times 10^6 \text{ m}^3$ le 30 août, l'activité de coulées de blocs et cendres connut une augmentation jusqu'à la mi-septembre. A

partir de ce moment, l'activité du dôme augmenta rapidement, se concentrant au-dessus de la paroi Nord du cratère. Le 28 août, le volume du dôme était de $80 \times 10^6 \text{ m}^3$ et le volume total émis, incluant la lave du dôme et les dépôts de coulées pyroclastiques, était de $160 \times 10^6 \text{ m}^3$.

Des essaims de séismes hybrides recommencèrent 24 heures avant un gros effondrement de dôme survenu à 4h02 du matin le 21 septembre, et se poursuivirent avec la même intensité après l'effondrement. Cet effondrement, d'un volume de $11 \times 10^6 \text{ m}^3$, fut accompagné de coulées pyroclastiques de blocs et cendres qui ont descendu à travers Tuitt's Ghaut et White's Ghaut jusqu'à la mer, au niveau de Spanish Point (Cole et al. 2002). Le panache associé à ces coulées pyroclastiques atteignit une altitude de 9 à 12 km et provoqua des chutes de cendres sur la majorité de l'île. Le dôme après cet événement était entaillé d'une cicatrice ouverte vers le nord sur plus de 300 m.

II.6.2.c 2^{ème} série : les explosions du 22 septembre au 21 octobre

La première des soixante quinze explosions de cette deuxième série se produisit le 22 septembre, 20 heures après l'effondrement majeur du 21 septembre, et la dernière fut enregistrée le 21 octobre vers 19h. L'intervalle de temps entre deux explosions était de $\sim 9,5\text{h}$, s'étalant entre 2h46 et 33h43. La hauteur des panaches produits variait entre 3,1 et 15,2 km, aucune variation systématique de la taille du panache avec le temps n'étant notée. Comme pour les explosions d'août, les coulées pyroclastiques produites se sont propagées dans la plupart des vallées autour du cratère (Figure 39). La première de ces soixante quinze explosions a créé un cratère du côté sud de la cicatrice du 21 septembre et dont la taille n'a que peu changé jusqu'au 21 octobre. A ce moment là, le volume du dôme était de $68 \times 10^6 \text{ m}^3$. Entre les deux explosions les plus espacées dans le temps (33h43), une vue dégagée permit de mettre en évidence la croissance d'un lobe à la base du cratère. Dès la fin des explosions, le 21 octobre, l'extrusion d'un dôme au fond du cratère fut observée. En quelques jours, ce dôme dépassa les remparts créés par les téphras des différentes explosions vulcaniennes. Le 3 novembre, le dôme avait totalement rempli le cratère créé le 21 septembre.

II.6.3 Déroulement d'une explosion vulcanienne moyenne de 1997

Les 88 explosions vulcaniennes de 1997 sont très similaires au premier ordre, dans la façon dont elles se sont déroulé, le volume émis, la durée de l'explosion, l'intervalle de temps entre deux explosions, la hauteur de panache, etc. (Druitt et al. 2002). Les échantillons utilisés au cours de cette thèse sont, sans aucun doute, un mélange des produits de plusieurs de ces explosions vulcaniennes de 1997 car il est quasiment impossible d'attribuer les dépôts

échantillonnés à une explosion précise. Il est donc intéressant de dresser le portrait d'une explosion vulcanienne moyenne. Etant donné que sur les 88 explosions au total, 37 se sont déroulées la nuit et 30 durant des conditions météorologiques ne favorisant pas les observations, les remarques et les valeurs fournies dans les paragraphes suivants reposent sur le maximum de données possibles. En tout, vingt explosions ont été décrites en détails et les observations ont été faites en direct sur le terrain (Druitt et al. 2002), ou par analyse d'enregistrements vidéo de ces explosions (Formenti et Druitt 2003).

Une explosion vulcanienne de 1997 typique à la Soufrière Hills débute en moyenne 10h35min (entre 2h46 et 62h47) après la précédente. La plupart du temps, elle n'est précédée d'aucun signe précurseur, même si une augmentation de l'activité fumerolienne autour du dôme, quelques secondes à quelques minutes avant l'explosion, a parfois été observée. Elle est divisée en deux phases distinctes :

Une première phase, d'une dizaine de minutes et de forte intensité, qui comprend l'explosion majeure avec de forts taux d'émission (pendant quelques dizaines de secondes), et est caractérisée par l'effondrement de fontaines, par la formation d'un large panache turbulent et par la stabilisation de celui-ci dans l'atmosphère. Cette première phase commence avec la rapide ascension de nombreux jets formés de gaz, de cendres et de débris (Druitt et al. 2002 ; Formenti et al. 2003). Durant les premières secondes de chaque explosion, la vitesse de ces jets augmente, passant de 40 m s^{-1} pour les tous premiers, jusqu'à 140 m s^{-1} au bout de quelques secondes (Formenti et al. 2003 ; Figure 40a). Des blocs balistiques de taille décimétrique à métrique se détachent de ces jets et sont envoyés jusqu'à 1,7 km du cratère (Figure 40b), provoquant la formation de nuages de cendres visibles à grande distance lors de leur impact avec le sol. Puis, les jets ayant une densité plus de 100 fois supérieure à celles de l'air, s'effondrent depuis une hauteur moyenne de 300 à 650 m au-dessus du cratère, durant les 10 à 20 premières secondes de chaque explosion (Figure 40c, Figure 41).

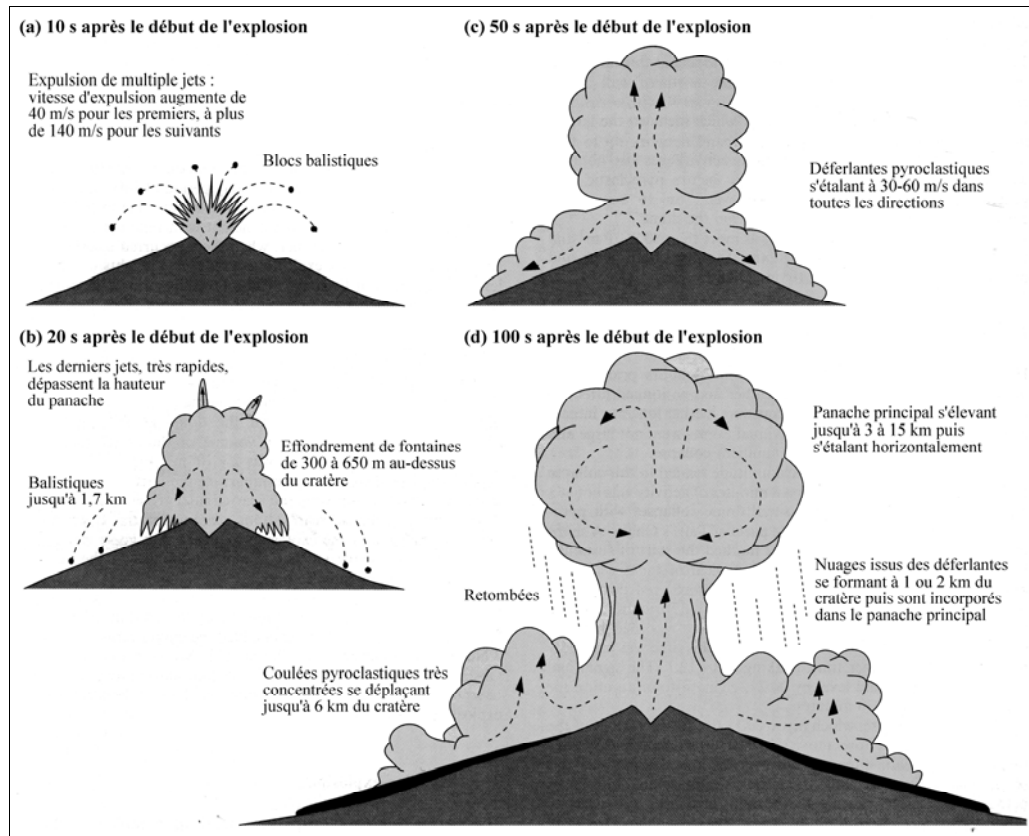


Figure 40. Déroulement d'une explosion volcanique typique en 1997 (Druitt et al. 2002, modifiée).

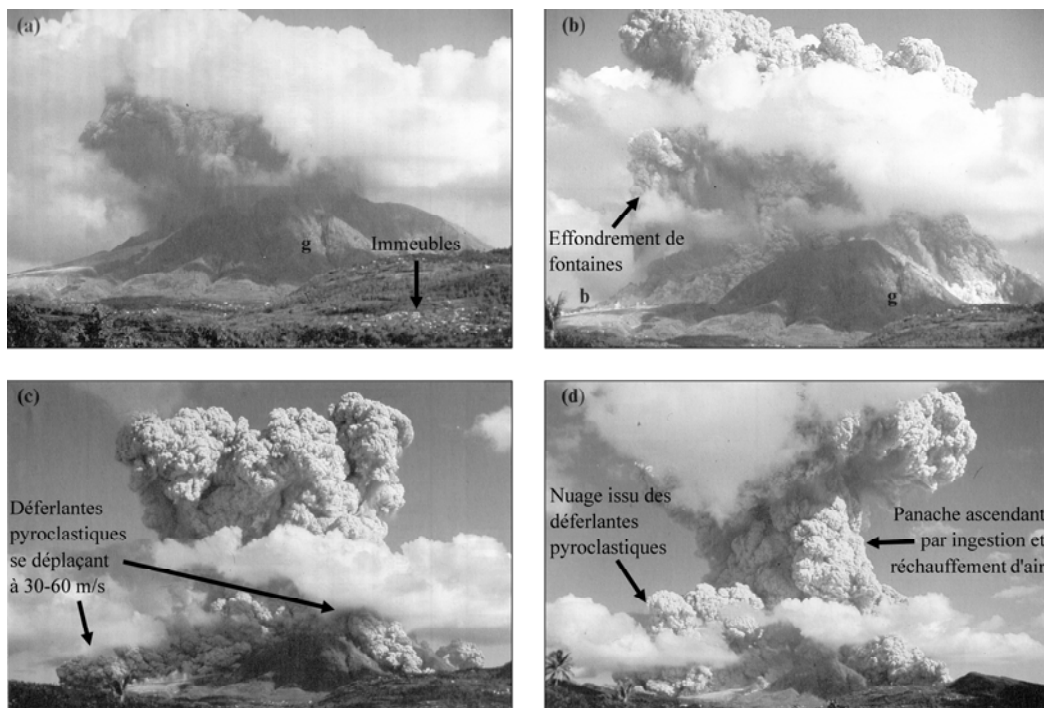


Figure 41. Explosion du 20 octobre 1997 à 15h13. L'effondrement de fontaines provoque la formation de déferlantes pyroclastiques sur les photographies (a), (b) et (c), se propageant à l'ouest (droite) et au nord (gauche) de Gages Moutain (g). Des cendres ont été expulsées par l'impact de blocs balistiques sur le sol (b). Le panache de cette explosion a atteint ~10 km au maximum. Photographies prises depuis le nord-ouest par P. Cole (Druitt et al. 2002, modifiées).

Simultanément, une partie des jets ingère et réchauffe assez d'air pour s'élever sous forme d'un ou plusieurs panaches (Figure 41c) qui s'unissent par la suite pour former une seule colonne vulcanienne atteignant 3,1 à 15,2 km d'altitude au-dessus du cratère (9,3 km en moyenne sur 68 panaches mesurés, Tableau 5, Figure 41d). Le panache s'étale ensuite horizontalement quand il a atteint son altitude maximale au bout d'une dizaine de minutes environ. La partie horizontale se détache par la suite et est entraînée suivant les vents dominants à cette altitude. Parallèlement, l'effondrement des fontaines crée des déferlantes pyroclastiques se déplaçant à des vitesses de l'ordre de 30 à 60 m s⁻¹ et ralentissant fortement à 1 ou 2 km du dôme pour s'élever en partie sous forme de panaches de cendres turbulents. Peu de temps après, de fines (0,5 à 1 m d'épaisseur) coulées pyroclastiques de blocs et cendres, très concentrées, dévalent la majorité des vallées les plus grandes autour du cratère, à des vitesses de l'ordre de 10 m s⁻¹ et sur des distances variant en général de 3 à 6 km.

La seconde et dernière phase de l'explosion, d'une durée de quelques dizaines de minutes (typiquement de 1 à 3 heures) et de faible intensité, est caractérisée par le déclin de l'explosion, avec la création d'un panache lent, incliné, et qui est transporté surtout vers l'ouest ou le nord-ouest par les alizés (en-dessous de 5 km d'altitude). Ce découplage entre une partie du panache, de haute altitude s'étalant horizontalement vers le nord ou nord-est, et une autre partie, plus basse, décroissant vers l'ouest ou le nord-ouest, est caractéristique de la plupart des explosions de 1997. Le panache décroît ensuite sur une durée de 1 à 3 heures. Durant cette phase de déclin, il se produit parfois une émission pulsatile de petits panaches de gaz et de cendres, sur une échelle de temps de l'ordre de 1 à 2 minutes.

II.6.4 Les produits émis

II.6.4.a *Les dépôts des écoulements pyroclastiques*

Les écoulements pyroclastiques (coulées et déferlantes) se sont déposés dans la plupart des vallées entourant le cratère (Figure 39), surtout dans la Tar River et la White River où ils ont atteint la mer, et dans Fort Ghaut, où ils se sont arrêtés à quelques centaines de mètres de la côte. Certains écoulements des explosions d'août se sont dirigés vers le nord où ils ont atteint jusqu'à 6 km au niveau du village de Farm, déjà recouvert le 25 juin par des écoulements pyroclastiques. Les écoulements de septembre et octobre ont pris la même direction, se propageant aussi dans White's Ghaut, et dépassant même les dépôts de la coulée de blocs et cendres du 21 septembre (Cole et al. 2002), atteignant localement la mer. Selon l'angle de l'explosion, les nombreuses vallées entourant le cratère ont été plus ou moins touchées au cours des différentes explosions.

Les dépôts de ces écoulements, décrits par Cole et al. (2002) et Druitt et al. (2002), sont composés de nombreux lobes d'environ 1 m d'épaisseur, jusqu'à 300 m de longueur, et dont l'extrémité mesure 10 à 50 m de large (Figure 42a-c), que se soit dans les vallées ou dans les plaines. Ces lobes présentent des levées bien définies, donnant une forme légèrement concave au sommet. Leur front est relativement riche en ponce moins vésiculées et bien arrondies comparé au centre du lobe, et les bords des lobes sont très pauvres en matrice (Figure 42d ; Cole et al. 2002). La température de mise en place de ces écoulements pyroclastiques est assez faible puisque des mesures de leur température 2h après la fin d'une explosion sont de 180 à 220°C (Druitt et al. 2002). Ceci est cohérent avec les observations faites sur les vidéos qui montrent une disparition assez rapide de la luminescence sur la vidéo (perte de chaleur). Cette perte rapide de chaleur est probablement due à l'ingestion d'air beaucoup plus froid (Druitt et al. 2002), comme semble le confirmer des modélisations numériques de ces explosions (Clarke et al. 2002).

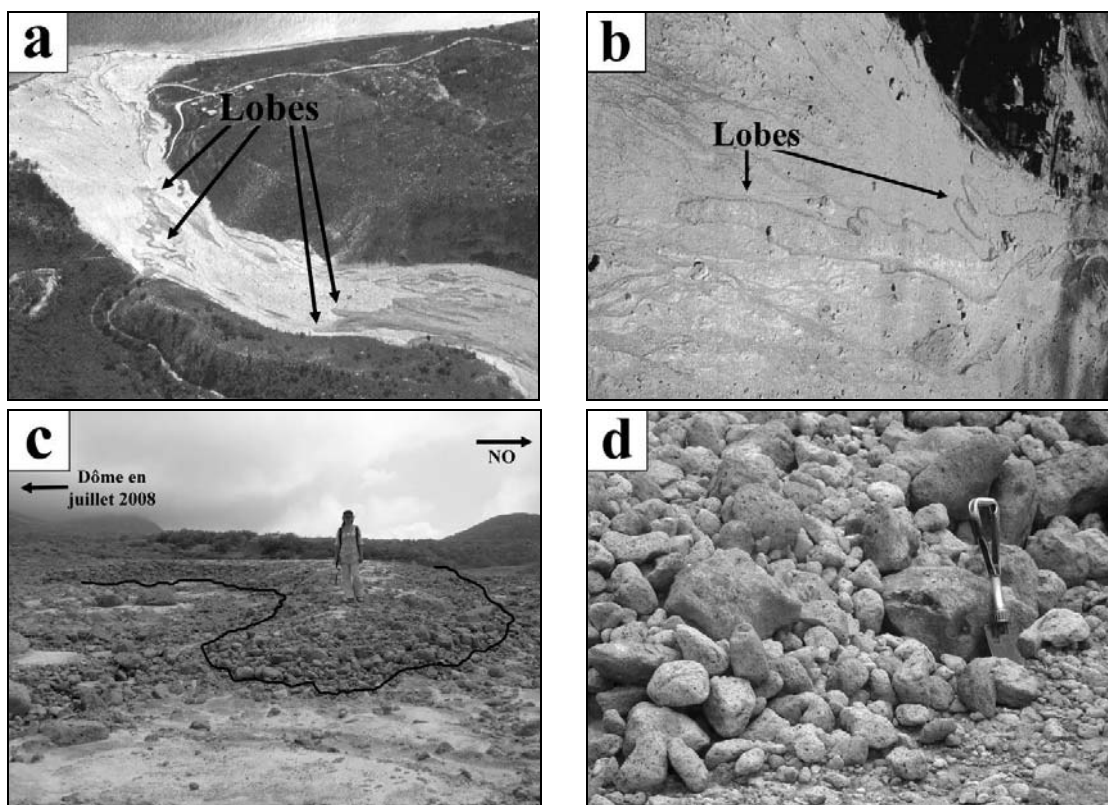


Figure 42. (a) Dépôts de coulées pyroclastiques des explosions de sep/oct 1997 dans la White River Valley (tirée de Cole et al. 2002). La route en haut à droite de l'image donne l'échelle. (b) Lobes de coulées pyroclastiques de sep/oct 1997 recouvrant les dépôts de la coulée de blocs et cendres du 21 septembre 1997 (photo TH Druitt). La largeur du lobe final est de ~20 m. (c) Petit lobe d'une coulée de ponce d'une explosion volcanienne de 1997 (Photographie TH Druitt, Trants, juillet 2008). Le dôme, à gauche de l'image, est en partie caché par les nuages. (d) Ponces arrondies jusqu'à 50 cm de diamètre, constituant le front des lobes (Trants, juillet 2008).

Les dépôts de ponces et cendres contiennent entre 10 et 23 %pds de cendre fine (Cole et al. 2002). Des coupes à travers ces lobes ont montré que les dépôts étaient massifs, présentant soit un granoclassement inverse, soit une absence de classement. Environ la moitié des dépôts présentent un fin niveau basal (< 2 cm), pauvre en cendres fines. Il a aussi été noté la présence de structures d'échappement des gaz et l'imbrication grossière de clastes allongés dans la partie inférieure de ces dépôts.

II.6.4.b Les dépôts de retombées

Les retombées des explosions ont trois sources distinctes (Bonadonna et al. 2002). (1) des blocs ponceux (avec peu de lithiques), des lapilli et des cendres provenant du panache central et de la partie s'étalant horizontalement (« umbrella cloud »). Des clastes de ponce jusqu'à 10 cm de diamètre se sont abattus sur St George's Hill, de 6,5 cm sur South Soufrière Hills et au nord de Plymouth, de 4,5 cm sur Windy Hill et Cork Hill, de 4 cm au niveau du MVO et de 2 cm au nord de Montserrat. (2) Des cendres provenant des nuages issus des coulées pyroclastiques et de leur élutiation, la plupart se mêlant aux retombées liées au panache central mais des retombées sporadiques ont été observées, générées par des coulées et des déferlantes pyroclastiques se produisant dans divers secteurs autour du volcan. (3) Des cendres provenant du panache déclinant, dans la seconde phase de l'explosion. A part dans un rayon de quelques kilomètres autour du cratère, l'épaisseur des retombées d'une seule explosion, composées de cendres et de clastes dispersés, dépasse rarement quelques millimètres. La succession des explosions, le changement dans la direction et l'intensité des vents et le mélange des retombées provenant des trois sources, rendent difficile à identifier la distribution spatiale de ces retombées.

II.6.5 Les volumes émis et la profondeur de vidange du conduit

Druitt et al. (2002) ont estimé que chaque explosion expulsait en moyenne $3 \times 10^5 \text{ m}^3$ DRE de magma, dont $1,1 \times 10^5 \text{ m}^3$ (~37%) sous forme de retombées et $1,9 \times 10^5 \text{ m}^3$ (~63%) sous forme de dépôts de coulées pyroclastiques. En supposant qu'environ 10% des retombées proviennent des panaches issus des écoulements pyroclastiques (Bonadonna et al. 2002), le volume total émis par chaque explosion peut être divisé comme suit : $1,0 \times 10^5 \text{ m}^3$ proviennent des retombées du panache central et de sa fraction étalée horizontalement, $1,9 \times 10^5 \text{ m}^3$ se retrouvent sous forme d'écoulements pyroclastiques, tandis que les $0,1 \times 10^5 \text{ m}^3$ restants sont issus des panaches associés aux écoulements pyroclastiques. Cependant, il existe une forte variation des volumes émis entre les explosions les plus faibles et les plus fortes.

Si on considère que le diamètre du conduit (25-30 m, Watts et al. 2002 ; calculé à partir de la largeur des extrusions visibles lors des premières explosions) ne varie pas au fur et à mesure des différentes explosions (Voight et al. 1999), alors la vidange du conduit pendant une explosion vulcanienne moyenne se produit jusqu'à ~500 m sous le fond du cratère. Cette profondeur est issue d'un calcul à l'aide d'un volume DRE et la profondeur sur laquelle s'est vidée le conduit en réalité (considérant un magma en partie vésiculé), ne devait pas dépasser ~1 km pour une explosion moyenne et devait atteindre les 2 km ou plus, pour les explosions les plus violentes (Druitt et al. 2002). Cette profondeur de vidange semble être assez bien contrainte puisqu'elle a été obtenue de différentes manières : via des calculs de volumes (1 à 2 km, Bonadonna et al. 2002 ; Druitt et al. 2002) ; par la modélisation numérique (proche de 2 km, Melnik et Sparks 2002), ou via les calculs de pression de trempe par analyses des microlites (< 2 km, Clarke et al. 2007).

II.6.6 Chimie des éléments majeurs et volatils : cristallinité et dégazage

II.6.6.a Chimie des éléments majeurs, cristallinité

Comme indiqué précédemment, le magma émis depuis 1995 par la Soufrière Hills n'a quasiment pas varié en termes de composition chimique. Les 88 explosions ont éjecté une andésite contenant ~58-60 %pds de SiO₂ (Devine et al. 1998) et présentant un assemblage minéralogique de phénocristaux composé de plagioclase (69%), d'amphibole (15%), d'orthopyroxène (12%), de magnétite et ilmenite (<5%) et de quartz (<2% ; Barclay et al. 1998). Les microlites sont composés de plagioclase, orthopyroxène, clinopyroxène, magnétite, ilmenite et d'une phase siliceuse, tandis que le verre matriciel est de composition rhyolitique (Barclay et al. 1998). L'importance de leur présence pour les processus de vésiculation du magma sera mise en évidence dans les Chapitres 3 et 4 de ce manuscrit.

La teneur totale en cristaux (phénocristaux + microcristaux + microlites) a été évaluée par plusieurs méthodes. Harford et al. (2003) ont réalisé une série d'analyses chimiques en éléments majeurs sur plusieurs échantillons dont certains proviennent des explosions vulcaniennes de 1997. A l'aide de la teneur en potassium et en utilisant des bilans de masse, ils ont calculé une fraction cristalline de ~71 %pds pour des ponces (si on ne considère que leurs échantillons d'août à octobre 1997). Burgisser et al. (soumis, a) ont mesuré la fraction cristalline par analyses d'images en 2D sur une collection d'échantillons provenant uniquement des explosions vulcaniennes (dont certains communs à ceux que nous avons étudiés) et ont obtenu des teneurs de ~70 %vol. Nous utiliserons les deux mêmes méthodes de détermination de la cristallinité dans ce manuscrit (Chapitres 6 et 3, respectivement).

La teneur en phénocristaux ($> 300 \mu\text{m}$) et microphénocristaux ($\sim 100\text{-}300 \mu\text{m}$, Murphy et al. 2000) uniquement, varie selon les études de $\sim 40 \text{ \%vol}$ (Barclay et al. 1998 ; Devine et al. 1998) à $45\text{-}55 \text{ \%pds}$ (Murphy et al. 2000). Villemant et al. (2008) ont calculé la teneur en phénocristaux par bilans de masse sur l'ensemble des oxydes et à l'aide de la méthode des moindres carrés, dans des échantillons issus des diverses phases éruptives de la Soufrière Hills depuis 1995. Pour des ponces issues des explosions vulcaniennes de 1997, ils ont obtenu une teneur en phénocristaux de $48 \pm 4 \text{ \%pds}$.

La teneur en microlites seuls ($< 100 \mu\text{m}$) dans la phase solide est de l'ordre de 20 à 32 \%pds (Murphy et al. 2000). Par ailleurs, Harford et al. (2003) ont estimé que la teneur en verre matriciel dans la phase solide variait de 10 à 34 \%pds . Considérant ces valeurs, la teneur en microlites dans la matrice est $\sim 35\text{-}75 \text{ \%pds}$. Par analyses d'images, Burgisser et al. (soumis, a) ont obtenu que les microlites représentent de 11 à 51 \%vol (soit $\sim 12\text{-}54 \text{ \%pds}$) de la matrice. La différence peut s'expliquer par la présence de très petits microlites qui n'ont pu être pris en compte par analyse d'images. Les teneurs en microlites de Burgisser et al. (soumis a) mais aussi les teneurs en microlites de plagioclases mesurées par Clarke et al. (2007) montrent une corrélation négative avec la vésicularité de l'échantillon, les échantillons les plus denses étant les plus riches en microlites (Figure 43). Nous verrons par la suite (Chapitres 3 et 4) l'importance de ces microlites en termes de processus de vésiculation.

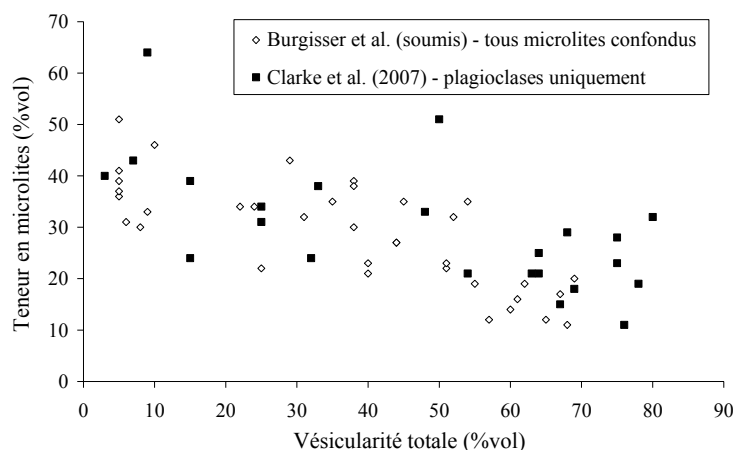


Figure 43. Relation entre la vésicularité totale d'un échantillon et sa teneur en microlites dans la matrice d'après les données de Burgisser et al. (soumis, a ; toutes phases minérales confondues) et de Clarke et al. (2007 ; microlites de plagioclase uniquement).

Le reste de la matrice est constitué d'un verre rhyolitique contenant, selon les études, de $74,3 \pm 1,7 \text{ \%pds}$ (Edmonds et al. 2001) à $78,7 \pm 2,2 \text{ \%pds}$ (Burgisser et al. soumis, a) de SiO_2 .

II.6.6.b Chimie des éléments volatils, dégazage

La plupart des teneurs en H₂O, Cl, F et S disponibles dans la littérature et concernant les inclusions magmatiques et les verres matriciels des échantillons de la Soufrière Hills sont récapitulés dans le Tableau 6.

Les teneurs en volatils ont été mesurées dans les inclusions magmatiques contenues dans les plagioclases, sensées représenter les teneurs initiales du magma dans la chambre magmatique. Ces inclusions contiennent $4,27 \pm 0,54$ %pds d'H₂O et < 60 ppm de CO₂ (Barclay et al. 1998), $\sim 3\,300$ ppm de Cl ($3\,265 \pm 1\,058$ ppm, Edmonds et al. 2001 ; $3\,372$ ppm, Devine et al. 2003 ; $1\,500$ à $4\,500$ ppm, Humphreys et al. 2009), 275 ± 250 ppm de F et 46 ± 40 ppm de S (Edmonds et al. 2001). Les inclusions magmatiques mesurées par Humphreys et al. (2009) dans deux ponces issues d'une coulée pyroclastique du 8 janvier 2007 semblent plus hétérogènes et plus riches en eau ($1,14$ à $6,24$ %pds).

Il existe peu de mesures directes des volatils dans les verres matriciels des échantillons des explosions vulcaniennes de 1997, en raison des difficultés techniques qui seront détaillées dans le Chapitre 6. Edmonds et al. (2001) ont tout de même mesuré par microsonde électronique et LA-ICP-MS (spectrométrie de masse à ablation laser) des teneurs en chlore de $2\,515 \pm 1\,824$ ppm et des teneurs en fluor et soufre de 341 ± 300 et 70 ± 61 ppm respectivement. Harford et al. (2003) ont mesuré par microsonde électronique des teneurs en Cl similaires ($2\,700$ à $3\,100$ ppm) dans les verres matriciels des ponces. Villemant et al. (2008) ont calculé indirectement les teneurs en H₂O, Cl, F et S dans la matrice (et non le verre seul) à partir des teneurs de ces éléments dans la roche totale et des proportions de phénocristaux, via des bilans de masse. Ils ont obtenu des valeurs de $0,2$ à $0,6$ %pds d'eau, 684 à $2\,275$ ppm de chlore, jusqu'à 190 ppm de fluor et jusqu'à 118 ppm de soufre. En corrigeant ces valeurs de la présence de microlites (~ 35 - 75 %pds), on obtient une teneur moyenne en eau de $\sim 1,0 \pm 0,6$ %pds et une concentration moyenne en chlore de $\sim 3\,120 \pm 1\,250$ ppm.

Tableau 6. Teneurs en H₂O, Cl, F et S mesurées dans des inclusions magmatiques et dans la matrice ou verre matriciel des produits des explosions volcaniennes de 1997 à la Soufrière Hills. Les valeurs obtenues sur la matrice (verre + microlites) par Villemant et al. (2008) ont été corrigées en tenant compte d'une teneur en verre de 25 à 65 %pds.

	H ₂ O (%pds)	Cl (ppm)	F (ppm)	S (ppm)	Source
Inclusions magmatiques	4,27±0,54	-	-	-	Barclay et al. (1998)
	-	3 372	-	-	Harford et al. (2003)
	-	3 265±1 058	275±50	46±40	Edmonds et al. (2001)
	1,14 à 6,24	1 500 à 4 500	-	-	Humphreys et al. (2009)
Matrice	0,2 à 0,6	684 à 2 275	< 190	< 118	Villemant et al. (2008)
Verre matriciel	-	2 515±1 824	341±300	70±61	Edmonds et al. (2001)
	-	2 700 à 3 100	-	-	Harford et al. (2003)
	0,2 à 2,8	-	-	-	Burgisser et al. (soumis,a)
	(corrigé)	1,05±0,61	351±179	110±110	Villemant et al. (2008)

Burgisser et al. (soumis, a) ont réalisé des mesures de teneurs en eau du verre matriciel par titration Karl Fisher sur une série d'échantillons des explosions volcaniennes, rassemblant toutes les textures observées. Parallèlement, ils ont évalué la porosité totale de chaque échantillon par analyses d'images. Les teneurs en eau dans les verres matriciels (Figure 44) augmentent fortement avec la vésicularité, étant de 0,2 à ~0,4 %pds dans les échantillons denses, intermédiaires dans les bombes en croûte de pain et les ponces rubanées (de l'ordre de ~1 %pds avec un maximum à ~1,6 %pds) et maximales dans les ponces de retombées (entre 1,4 et 2,8 %pds avec une moyenne de ~2 %pds).

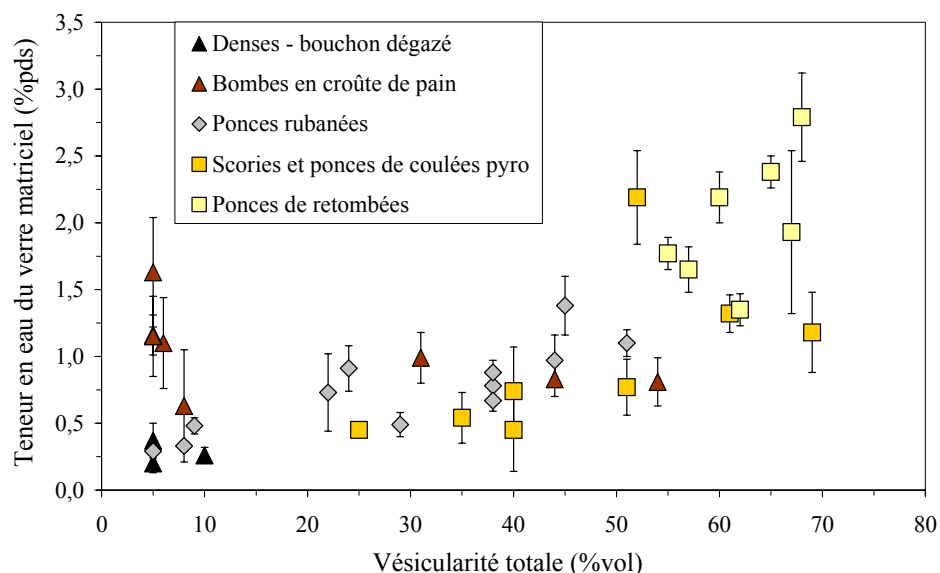


Figure 44. Teneurs en eau dans les verres matriciels d'une série d'échantillons des explosions volcaniennes de 1997 à la Soufrière Hills (données de Burgisser et al. soumis, a).

A l'aide de leurs données concernant les volatils, leurs mesures texturales effectuées sur les échantillons et de modèles de dégazage en systèmes ouvert et fermé, Villemant et al.

(2008) ont proposé que les teneurs en volatils des ponces des explosions vulcaniennes sont le résultat d'un dégazage en deux étapes lors de la remontée du magma. Une première étape entre la chambre magmatique et jusqu'à une profondeur de ~1 km (20 MPa) conduit à un dégazage de l'eau et des halogènes, permettant d'expliquer l'écart entre les teneurs calculées dans la matrice et celles mesurées dans les inclusions magmatiques (en chlore et en eau notamment). Cette profondeur correspond, selon ces auteurs, à un niveau auquel le magma serait resté stocké pour une durée de temps significative, avant de subir une phase de dégazage plus explosive. Dans cette deuxième étape, le dégazage se fait en système clos jusqu'à la surface. Durant les explosions, les effets cinétiques dus à la décompression sont dominants, la cristallisation est complètement inhibée et la diffusivité des halogènes est très faible (10^{-12} - 10^{-13} m² s⁻¹). Le coefficient de partage du chlore entre le liquide silicaté et la vapeur dans ces conditions est estimé à ~20 (Villemant et al. 2008).

Pour Burgisser et al. (soumis, a), le dégazage entre deux explosions a lieu en système ouvert jusqu'à une profondeur de ~3 km, et en système clos plus profondément. Ce dégazage en système ouvert permet d'expliquer les teneurs en eau mesurées dans les verres qui dévient fortement des teneurs attendues si on considère un système clos sur toute la longueur du conduit.

La différence entre les deux modèles est que le modèle de Burgisser et al. (soumis, a) prend en compte les processus de vésiculation syn-explosifs qui ont été étudiés et quantifiés durant cette thèse (Chapitres 3 et 4 ; Giachetti et al. soumis). Les processus de dégazage d'un point de vue chimique seront détaillés dans le Chapitre 6 de ce manuscrit.

II.6.6.c Stratigraphie pré-explosive du conduit

Les expériences de décompression de Hammer et Rutherford (2002) et de Couch et al. (2003a,b) ont montré une relation en loi de puissance entre la proportion volumique des microlites de plagioclases contenus dans la matrice d'un échantillon et sa pression de trempe, c'est-à-dire la pression à laquelle la texture de l'échantillon est figée. Clarke et al. (2007) ont analysé texturalement une série d'échantillons issus des explosions vulcaniennes et utilisé cette relation afin de contraindre le style de la décompression et la pression de trempe. Burgisser et al. (soumis, a) ont appliqué la même méthode sur une série d'échantillons des explosions vulcaniennes de 1997. Ces deux études (Clarke et al. 2007 et Burgisser et al. soumis, a), réalisées par analyses d'images en 2D, permettent d'obtenir la pression de trempe pour chaque échantillon. Parallèlement, et à l'aide de la loi de solubilité de Liu et al. (2005 ; cf. Chapitre 1), Burgisser et al. (soumis) ont calculé les pressions de trempe de leurs

échantillons à partir des teneurs en eau des verres matriciels présentés précédemment. En considérant que la pression de trempe égale la pression initiale du magma en profondeur (Formenti et al. 2003 ; Diller et al. 2006 ; Clarke et al. 2007), toutes ces données permettent de dresser une stratigraphie pré-explosive du conduit.

Les profils pression pré-explosive/vésicularité (Figure 45) obtenus à partir des teneurs en microlites ou des teneurs en eau des verres matriciels, montrent la même tendance. La pression de trempe varie jusqu'à 25-30 MPa (Clarke et al. 2007 ; Figure 45a) et jusqu'à 55-65 MPa (Burgisser et al. soumis, a ; Figure 45b) selon la méthode utilisée. Les différenciations de textures réalisées par Burgisser et al. (soumis, a) permettent de les replacer stratigraphiquement dans le conduit. Avant chaque explosion, le conduit était composé d'échantillons denses (0,1-1 MPa), d'une zone hétérogène englobant les (futurs) bombes en croûte de pain et des ponces rubanées (~1-16 MPa), et d'une zone plus vésiculée et plus homogène, s'étendant jusqu'à plusieurs dizaines de MPa en profondeur et qui donne naissance à des ponces de coulées pyroclastiques (2-34 MPa) et des ponces de retombée (15-55 MPa).

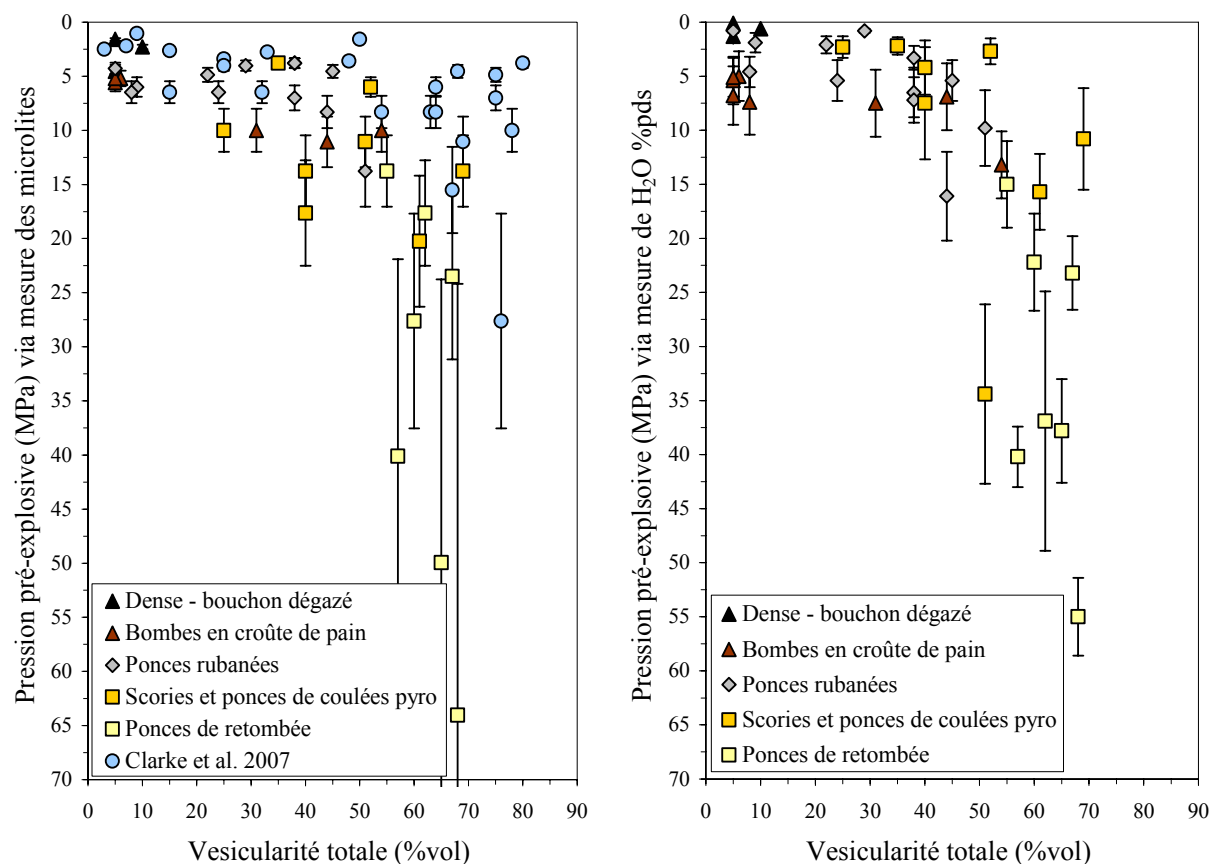


Figure 45. Profils pression pré-explosive/vésicularité finale, réalisés à partir des données de Clarke et al. (2007) et Burgisser et al. (soumis, a) via la mesure des teneurs en microlites par analyses d'images (a) ou des teneurs en eau dans les verres matriciels (b).

Cependant, ces profils font l'hypothèse que la vésicularité pré-explosive est égale à la vésicularité finale, autrement dit qu'il n'y a aucune vésiculation syn-explosive. Hors, nous verrons que les mécanismes de vésiculation durant ces explosions vulcaniennes (qui n'avaient jamais été étudiés en détails avant cette thèse) ne sont pas inexistantes et qu'ils doivent être pris en compte dans les calculs des pressions pré-explosives (Chapitres 3 et 4). De plus, Burgisser et al. (soumis, a) ont montré que les profils de conduit pré-éruptifs tels que ceux présentés en Figure 45 impliquent un magma contenant initialement $\sim 10,6$ %pds d'eau dissoute afin d'expliquer les teneurs élevées dans les ponces, ce qui est largement supérieur aux valeurs mesurées dans les inclusions à la Soufrière Hills (Barclay et al. 1998) et même supérieur aux valeurs connues pour les magmas d'arc en général (Wallace 2005). De plus, considérant ces profils pré-explosifs, la teneur en eau disponible et qui sert de moteur pour propulser les jets vulcaniens serait de ~ 8 %pds à 49 MPa (Burgisser et al. soumis, a), valeur largement supérieure aux ~ 2 %pds calculés par Formenti et al. (2003) par analyses vidéo des explosions.

Burgisser et al. (soumis, a) ont établi un modèle numérique permettant de relier les vésicularité initiale et finale et qui tient compte des résultats que nous avons obtenus concernant les processus de vésiculation syn-explosifs. Pour cette raison, les résultats de ce modèle seront exposés et discutés dans la synthèse de ce manuscrit.

II.6.7 Dynamique de conduit durant les explosions vulcaniennes

II.6.7.a *Mécanisme général*

Un mécanisme général a été proposé par Druitt et al. (2002) pour expliquer le déroulement de ces explosions vulcaniennes de 1997 (Figure 46) :

Chaque explosion commence quand la pression sous un bouchon de lave visqueuse, dégazé et riche en cristaux, dépasse la résistance mécanique de celui-ci (Figure 46a), provoquant alors son explosion (Hoblitt et al. 1996 ; Druitt et al. 2002). Pendant les premières secondes de chaque explosion vulcanienne, des fragments de ce bouchon dégazé sont expulsés sous forme de balistiques (blocs denses représentant environ 5 %vol du total des dépôts, Clarke et al. 2002), puis une vague de fragmentation se propage vers le bas du conduit. Cette fragmentation provoque la fracturation de la mousse magmatique et son expulsion hors du conduit.

Les observations des explosions montrent que c'est durant la première phase, qui dure quelques dizaines de secondes, que la quasi-totalité du volume est expulsé, et que donc, la

vague de fragmentation devait avoir une vitesse moyenne de déplacement de 10 à 50 m s⁻¹ (Figure 46b ; Druitt et al. 2002). La même gamme de vitesse de la vague de fragmentation a été obtenue par modélisation numérique (Melnik et Sparks 2002), les vitesses obtenues pour les premières secondes de chaque explosion étant plus importantes, semblant montrer que la fragmentation a ralenti au fur et à mesure de son déplacement en profondeur. Lorsque celle-ci atteint un niveau où la surpression dans le magma est trop faible, elle s'arrête, et l'éruption cesse. Le mécanisme d'arrêt de la fragmentation dans une explosion vulcanienne est encore assez mal connu, même si nous savons qu'il est lié à des paramètres tels que la teneur en vésicules, la pression contenue dans ces vésicules, la perméabilité du magma, etc.

Cette vague de fragmentation est probablement précédée par une vague de décompression, qui provoque l'exsolution des volatils du magma (Melnik et Sparks 2002 ; Toramaru 2006) et donc, la nucléation, la croissance et parfois la coalescence de vésicules. La vitesse de propagation de cette vague est égale à celle du son se déplaçant dans le magma vésiculé (de l'ordre de 100 à plusieurs centaines de m s⁻¹), et est donc fortement dépendante de la teneur en vésicules du magma juste avant le début de l'explosion. Toramaru (2006) l'a estimée à ~300 m s⁻¹ dans le cas d'une éruption plinienne.

Enfin, entre deux explosions (Figure 46c), le magma remonte de façon visqueuse dans le conduit à une vitesse de quelques cm s⁻¹ ou plus (1 à 2 km en ~10h), cette vitesse devant nécessairement être supérieure à ~1,2 cm s⁻¹ pour pouvoir expliquer l'absence de réaction de la bordure des amphiboles (Devine et al. 1998). Dans au moins plusieurs cas, il a été observé que le conduit était totalement rempli avant le début de l'explosion suivante, et qu'un petit dôme se formait même au fond du cratère. Une fois le conduit rempli, il y a une remise en pression du système jusqu'à ce que la pression dépasse une valeur critique et qu'un nouveau cycle débute.

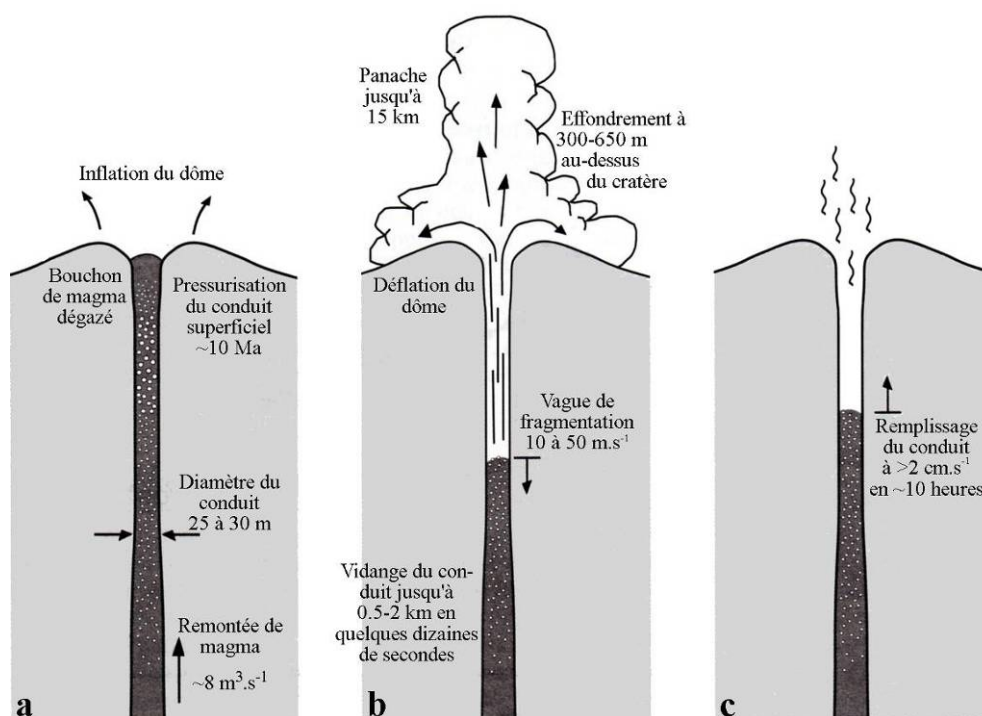
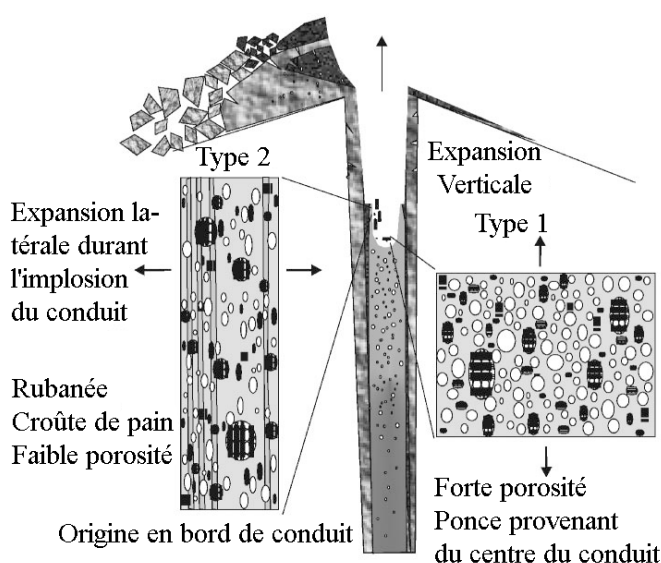


Figure 46. Résumé d'un cycle vulcanien moyen à la Soufrière Hills en 1997 (Druitt et al. 2002) : (a) juste avant le début d'une explosion, (b) durant l'explosion, (c) durant l'intervalle entre deux explosions.

Kennedy et al. (2005) ont étudié texturalement une vingtaine d'échantillons des explosions vulcaniennes de 1997 et ont effectué des expériences de décompression et fragmentation sur ces échantillons (Alidibirov et Dingwell 1996 ; Spieler et al. 2004). Ils ont distingué deux types d'échantillons : (1) des ponces texturalement homogènes, très vésiculées (60-68 % de porosité), montrant parfois un alignement des cristaux et (2), des échantillons plus denses (3-45 %), plus hétérogènes, souvent rubanés, et dont certains présentent une surface en croûte de pain. Selon eux, les échantillons de type (1) qui contiennent des cristaux avec des fractures perpendiculaires à leur alignement, fragmentent rapidement, alors que ceux du type (2) qui montrent des cristaux avec des fractures parallèles à l'alignement, fragmentent plus lentement. Ces auteurs proposent que les échantillons du type (1) proviennent de la partie centrale du conduit et ont subi une décompression rapide (Figure 47a), globalement verticale, alors que dans un second temps, les échantillons du type (2) ont décomprimé plus lentement lors de l'implosion latérale de certaines parties du conduit (Figure 47a). Ce mécanisme permettrait d'expliquer l'élargissement du conduit remarqué durant certaines explosions (Figure 47b) ainsi que l'observation de jets latéraux (Druitt et al. 2002 ; Formenti et al. 2003a). Comme nous le verrons dans les Chapitres 3 à 5, nous avons aussi observé certaines relations entre la texture et le style de fracturation des amphiboles, mais nous ne les avons pas interprétées exactement comme Kennedy et al. (2005).

a) Origine des ponces de Type 1 et Type 2



b) Implications dynamiques

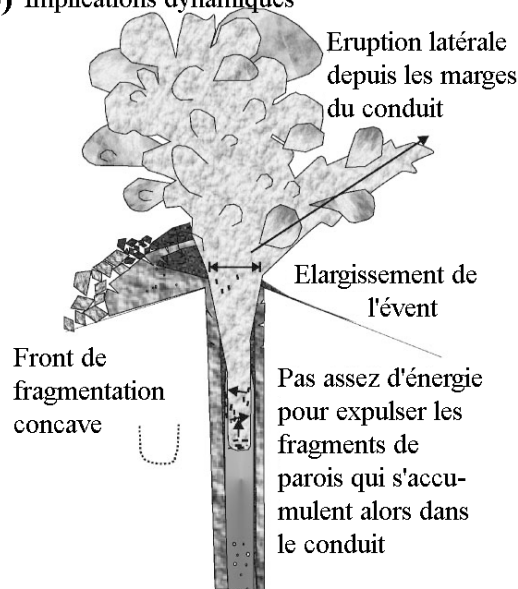


Figure 47. Modèle de fragmentation lors des explosions volcaniques de la Soufrière Hills en 1997 proposé par Kennedy et al. (2005 ; Figure modifiée) permettant d'expliquer les deux types de textures observées (cf. texte pour détails).

II.6.7.b Modélisation numérique du dynamisme de conduit

Plusieurs modélisations analytiques et numériques des processus de conduit ont été réalisées pour tenter de comprendre le dynamisme de conduit durant ces explosions volcaniques de 1997. Ces modèles portent à la fois sur les mécanismes engendrant la formation du bouchon dégazé (Diller et al. 2006), mais aussi sur le dynamisme lors des explosions elles-mêmes (Melnik et Sparks 2002).

A partir d'un modèle numérique 1D simulant l'ascension à l'équilibre du magma, Diller et al. (2006) ont proposé, pour le cas d'un magma surpressurisé, perméable, et de roches encaissantes perméables, que le dégazage se produit à la fois verticalement et à travers les parois du conduit, créant une zone de magma dense en surface pouvant sceller le conduit et favorisant la formation d'une surpression. L'épaisseur de ce bouchon dégazé, ainsi que l'intensité et l'extension verticale de la surpression créée, dépendent surtout de la vitesse d'ascension du magma dans le conduit mais aussi de la perméabilité de l'édifice.

Afin de comprendre le mécanisme des explosions volcaniques, Melnik et Sparks (2002) ont modélisé l'écoulement dans un conduit d'un magma en déséquilibre, suite à la décharge du magma sus-jacent (« unloading »). Dans leur modèle, l'effondrement du bouchon dégazé provoque la propagation à la vitesse du son (jusqu'à plusieurs centaines de m s^{-1}) d'une vague de décompression qui accélère le magma, suivie d'une vague de fragmentation plus lente (plusieurs dizaines à une centaine de m s^{-1}), qui conduit à l'expulsion du magma

hors du conduit. Ils ont considéré que la fragmentation se produisait soit (1) à une porosité fixe (Sparks 1978 ; Wilson et al. 1980), (2) à une surpression critique (Barmin et Melnik 1993 ; Melnik 2000) ou (3) à une contrainte d'allongement critique (Alidibirov et Dingwell 1996 ; Papale 1999). Ils ont déduit de leurs résultats que les explosions vulcaniennes pouvaient être modélisées par un système dans lequel il n'y a pas de transfert de masse entre le magma et les bulles. Les trois critères de fragmentation donnent des résultats équivalents au premier ordre, même si les critères (2) et (3) produisent numériquement des pulsations dans l'éruption, se rapprochant du caractère pulsatile des explosions vulcaniennes de 1997. Les résultats obtenus sont en bon accord avec les observations et calculs liés au volume émis, à la durée des explosions, la profondeur de conduit vidangée, les vitesses d'éjection et les taux d'émission. Cependant, dans ce modèle, l'une des trois hypothèses principales concernant le magma non fragmenté est qu'il ne subit pas de nouvelle nucléation suite au passage de la vague de décompression. Cette hypothèse sera en partie contredite par les résultats de cette thèse (Chapitres 3 et 4).

II.6.7.c Mise en pression du conduit et fragmentation explosive

Chacune des explosions vulcaniennes est précédée par la mise en pression de la partie superficielle du conduit, sous un bouchon dégazé. La formation du bouchon en réponse au dégazage de la partie superficielle du conduit oblige le reste de la colonne à se comporter en système fermé, promouvant l'accumulation de pression sous ce bouchon (Tait et al. 1989 ; Sparks 1997 ; Stix et al. 1997 ; Hammer et al. 1999). Si le bouchon ne scelle pas hermétiquement l'extrémité du conduit, la pressurisation du conduit peut se développer via des variations de gradients de pression verticaux non-linéaires (Sparks 1997 ; Massol et Jaupart 1999 ; Voight et al. 1999 ; Druitt et al. 2002 ; Diller et al. 2006 ; Clarke et al. 2007) ou en raison de l'élasticité des parois du conduit qui tend à rétablir un gradient de pression lithostatique dans le conduit (e.g. Mitchell 2005).

Burgisser et al. (soumis, b) ont utilisé la stratigraphie pré-explosive établie par Burgisser et al. (soumis, a) afin de déterminer par modélisation numérique le mécanisme créant réellement cette surpression. Ils ont testé trois mécanismes permettant de développer une surpression : la cristallisation de microlites (mise en place rapide du magma entre les explosions et dégazage en système clos), l'écoulement du magma (effet combiné de la conservation de masse et de l'augmentation de viscosité par dégazage) et l'élasticité des parois. Ils ont ensuite confronté les conséquences sur l'édifice de l'intervention de ces processus à des mesures géodésiques effectuées durant les cycles d'inflation et de déflation de

l'édifice volcanique. L'écoulement du magma semble être le mécanisme qui permet de créer la surpression nécessaire à l'existence des explosions vulcaniennes. Ce modèle sera repris dans la synthèse et la discussion de ce manuscrit, car il prend indirectement en compte des résultats issus de cette thèse.

La surpression dans la partie superficielle du conduit juste avant chaque explosion était de l'ordre de 10 MPa selon les modélisations numériques de Melnik et Sparks (2002). Les enregistrements des inclinomètres et les mesures de déformation en champ lointain semblent indiquer que la surpression était au maximum de quelques dizaines de MPa à quelques centaines de mètres sous la base du dôme (Shepherd et al. 1998 ; Voight et al. 1999 ; 1-4 MPa à 740-970 m selon Widiwijayanti et al. 2005). Par expérimentations, Voight et al. (1999) et Martel et al. (2001) ont montré que la résistance mécanique d'un bouchon dégazé et fortement cristallisé tel celui présent lors des explosions de 1997 permettait de résister à des pressions pouvant atteindre 4 à 20 MPa, voire plus.

Une autre estimation de la pression pré-explosive du magma peut être obtenue à partir de la vésicularité des ponces. Il a été calculé à partir de la teneur initiale en eau et de la teneur en cristaux du magma dans le réservoir à 5-6 km de profondeur, que la teneur en eau du magma avant chaque explosion était de $1,6 \pm 0,3$ %pds. En utilisant cette valeur, Druitt et al. (2002) ont montré que pour que le magma atteigne une vésicularité de 55 %vol, les pressions de confinement devaient être de l'ordre de 5 à 15 MPa. Sachant que seulement 5% en volume des produits émis proviennent du dôme (Clarke et al. 2002) et considérant une profondeur vidangée (DRE) de 500 m en moyenne, le bouchon dégazé au sommet du conduit ne devait pas dépasser 25 m d'épaisseur, soit une pression magmastatique de 1 MPa (Druitt et al. 2002). Le magma sous le bouchon était donc en forte surpression juste avant le début de l'explosion, d'au moins plusieurs MPa par rapport au bouchon sus-jacent et aux parois du conduit l'entourant. La présence à faible profondeur d'un magma en forte surpression est cohérente avec l'apparition quelques secondes après le début de l'explosion des jets les plus rapides, dépassant 100 m s^{-1} (Clarke et al. 2002 ; Melnik et Sparks 2002 ; Druitt et al. 2002).

La présence de ponces de retombées tabulaires, vésiculées à 55-75 %vol, est en accord avec la fragmentation brutale, cassante, d'un magma vésiculé et pressurisé, présent dans la partie superficielle du conduit avant chaque explosion. La production de tels fragments angulaires requiert de forts contrastes de pression et des taux de décompression très rapides afin de tremper le magma (Dingwell 1996). Alidibirov et Dingwell (1996), ont montré par expérimentation que des différentiels de pression de l'ordre de quelques MPa au niveau de la

surface de fragmentation suffisent pour produire des clastes de forme plate, comme ceux échantillonnés à Montserrat.

II.6.7.d Mécanisme en profondeur

Si on évalue maintenant l'impact d'une explosion sur la partie profonde du conduit, jusqu'à la chambre magmatique, on peut considérer qu'après chaque explosion toute la colonne magmatique depuis la chambre remonte d'une distance égale à 1-2 km, correspondant au volume expulsé par l'explosion (Figure 48). En utilisant le volume DRE expulsé par chaque explosion (Druitt et al. 2002), une densité de $2\,600\text{ kg m}^{-3}$ (Sparks et al. 1998) et un diamètre de conduit entre 20 et 30 m (Voight et al. 1999), Clarke et al. (2007) ont calculé que le magma plus profond dans le conduit subit une décompression de 11 à 24 MPa à chaque explosion. Considérant un intervalle entre les explosions de $\sim 9,5\text{h}$ (Druitt et al. 2002), une pression de 125 à 130 MPa pour la chambre magmatique (Rutherford et al. 1998 ; Barclay et al. 1998 ; Devine et al. 1998), ils ont aussi compté qu'une parcelle de magma subissait entre cinq et douze décompressions de 11-24 MPa entre le moment où elle quitte la chambre et le moment où elle est émise à la surface lors d'une explosion. Jaquet et al. (2006, Figure 48) ont eux calculé que cette même parcelle enregistrerait huit décompressions de $\sim 16,2\text{ MPa}$ chacune, et subissait un total de 76h de remontée entre la chambre et la surface.

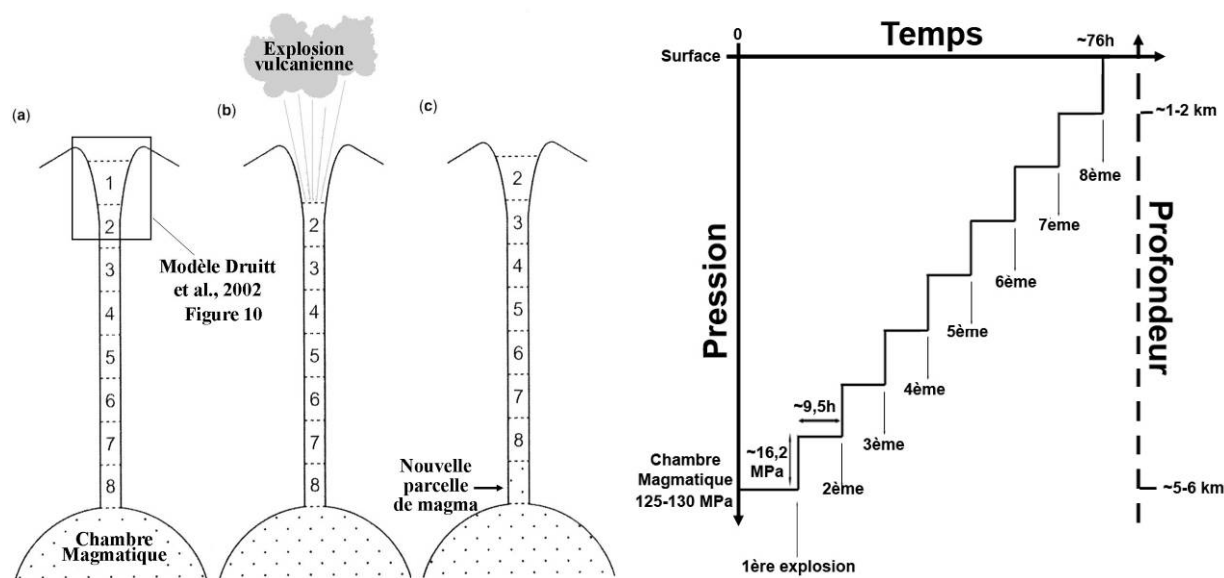


Figure 48. Modèle dynamique du conduit proposé par Jaquet et al. (2006, modifié). Ascension d'une parcelle de magma durant les cycles d'explosions volcaniennes (gauche) et sa traduction en termes de trajet pression/temps (droite). Une parcelle de magma sortant de la chambre subit, selon eux, 8 décompressions discrètes de $\sim 16,2\text{ MPa}$ chacune, avant d'être éjectée par une explosion.

III. Analyse texturale en deux
dimensions des produits des
explosions vulcaniennes de la
Soufrière Hills

III.1. Introduction

Le but de l'étude texturale des produits des explosions vulcaniennes de 1997 était de déterminer et classer les types de textures produites afin d'en obtenir des informations relatives dans un premier temps, puis, d'en tirer des données absolues concernant les processus de vésiculation du magma lors de ces explosions. De nombreux échantillons représentatifs d'une large gamme de textures et ont été récoltés lors de deux campagnes de terrain en 2006 et 2008, et de nombreux échantillons ont été observés et décrits directement sur le terrain, permettant d'obtenir de nombreuses informations avant toute analyse. Les échantillons récoltés ont ensuite été classés et certains ont été sélectionnés afin d'être étudiés au laboratoire. L'étude texturale s'est d'abord faite par observations à toutes échelles (œil nu, loupe binoculaire, microscope optique, microscope électronique à balayage) à la fois sur les échantillons bruts, des surfaces cassées, ou sur des lames minces, permettant d'obtenir des informations relatives sur les différentes textures. Une soixantaine d'échantillons représentatifs ont ensuite fait l'objet d'une étude par pycnométrie à hélium, permettant de déterminer leurs vésicularités ouverte et fermée. Six échantillons représentant 8 textures différentes ont enfin été les cibles d'une étude plus approfondie, incluant notamment le calcul de leurs distributions de tailles de vésicules et de cristaux. Les informations tirées de toutes ces observations et mesures nous ont permis de déterminer qualitativement et quantitativement les différents processus de vésiculation ayant conduit à la formation de ces textures très variées.

Dans une première partie de ce chapitre les méthodologies utilisées pour l'étude texturale en deux dimensions sont détaillées. La théorie associée à l'utilisation du pycnomètre à hélium mais aussi et surtout la méthodologie utilisée (et parfois mise au point) pour construire les distributions de tailles de vésicules et de cristaux, sont expliquées en détails. Les résultats et les conclusions issus de l'application de ces méthodes sur nos échantillons sont ensuite présentés sous forme d'un article soumis à *Journal of Volcanology and Geothermal Research* (Giachetti et al. soumis), précédé d'un résumé en français. Enfin, le chapitre se clôt par un résumé des observations et conclusions de ce chapitre.

III.2. Pycnométrie à hélium

III.2.1 Principe et théorie de la méthode

Le but de cette partie de l'étude est de mesurer la vésicularité totale de nos échantillons et d'en différencier la fraction connectée (porosité ouverte) de la fraction isolée (porosité fermée).

Considérons un échantillon de ponce de volume total externe V_{tot} et de masse totale m_{tot} , constitué de vésicules isolées (isol), de vésicules connectées (connec) et d'une fraction solide (solide), correspondant aux cristaux et au verre de trempe. Les relations suivantes liant les volumes entre eux et les masses entre elles sont :

$$V_{tot} = V_{isol} + V_{connec} + V_{solide} \quad [34]$$

$$m_{tot} = m_{isol} + m_{connec} + m_{solide} \approx m_{solide} \approx V_{solide} \times \rho_{solide} \quad [35]$$

Où V sont les volumes des différents constituants, m leurs masses et ρ_{solide} est la densité de la fraction solide. L'équation [35] est obtenue en considérant que la masse d'air dans les vésicules est négligeable par rapport à la masse de solide.

Soit X_{tot} la vésicularité totale de l'échantillon, nous obtenons :

$$X_{tot} = \frac{V_{isol} + V_{connec}}{V_{tot}} = \frac{V_{tot} - V_{solide}}{V_{tot}} = 1 - \frac{V_{solide}}{V_{tot}} \quad [36]$$

Puis en combinant les équations [35] et [36], nous obtenons :

$$X_{tot} = 1 - \frac{m_{tot}}{\rho_{solide} \times V_{tot}} \quad [37]$$

Cette équation permet de calculer facilement la vésicularité d'un échantillon connaissant son volume, sa masse et la densité de la phase solide qui le constitue. Cette dernière peut être calculée approximativement si on connaît les proportions relatives de cristaux et de verre de trempe, ainsi que la densité de l'assemblage minéralogique moyen et du verre. Cependant, elle peut être calculée plus précisément à l'aide d'un pycnomètre et d'une balance, en déterminant le volume (V_{solide}) et la masse (m_{solide}) de la fraction solide.

La pycnométrie est une méthode qui permet de déterminer de façon précise le volume d'un objet de forme irrégulière (grain, poudre...) à l'aide d'un liquide ou d'un gaz (cf.

Annexe 1 pour le détail du fonctionnement du pycnomètre à hélium utilisé). Dans notre cas, comme certaines des vésicules des échantillons sont très petites, un pycnomètre à hélium a été utilisé. L'atome d'hélium étant très petit, le gaz pénètre dans les irrégularités de surface de l'objet ainsi que dans les pores les plus petits (quelques microns) s'ils sont connectés à l'extérieur.

En broyant finement l'échantillon pour casser les plus petites vésicules isolées, et en plaçant la poudre ainsi obtenue dans le pycnomètre, le volume mesuré sera alors directement V_{solide} , et donc le calcul de la densité de la phase solide et de la vésicularité totale seront aisées.

En revanche, si la ponce est placée brute dans le pycnomètre, le volume mesuré (V_{mes}) sera égal à $V_{solide} + V_{isol}$, l'hélium ne pouvant pénétrer que dans les pores connectés à l'extérieur. Il est donc facile en utilisant ce volume mesuré V_{mes} de calculer la vésicularité connectée X_{connec} de l'échantillon :

$$X_{connec} = \frac{V_{connec}}{V_{tot}} = \frac{V_{tot} - (V_{isol} + V_{solide})}{V_{tot}} = \frac{V_{tot} - V_{mes}}{V_{tot}} = 1 - \frac{V_{mes}}{V_{tot}} \quad [38]$$

La vésicularité isolée est ensuite obtenue par simple soustraction entre la vésicularité totale et la vésicularité connectée ($X_{isol} = X_{tot} - X_{connec}$).

Les variables à déterminer pour calculer les différentes vésicularités (totale, connectée et isolée), sont donc V_{tot} , V_{mes} , V_{solide} , m_{tot} et m_{solide} .

III.2.2 Application

Afin de mesurer facilement le volume total externe des échantillons (V_{tot}), un parallélépipède a été découpé dans chaque claste à l'aide d'une scie à diamant et le volume de celui-ci a été calculé en multipliant les longueurs des côtés, mesurées à l'aide d'un pied à coulisse. Etant donné que les côtés ne sont pas toujours de longueur constante, dix mesures ont été effectuées sur chacun des côtés du parallélépipède et la moyenne a été utilisée pour calculer le volume :

$$V_{tot} = \overline{L_1} \times \overline{L_2} \times \overline{L_3} \quad [39]$$

Chaque échantillon a ensuite été séché durant 24 heures à 150°C afin d'évaporer l'eau résiduelle et a été pesé pour déterminer m_{tot} . Enfin, le volume de solide + vésicules isolées

(V_{mes}) de chaque parallélépipède a été mesuré à l'aide du pycnomètre à hélium, cinq mesures ayant été effectuées sur le même échantillon pour pouvoir calculer un V_{mes} moyen et une erreur.

Afin de calculer la densité de la phase solide, nous avons broyé finement les parallélépipèdes de 17 échantillons de tous types (ponces de retombée, scories et ponces de coulées pyroclastiques, intérieur et croûte de bombes en croûte de pain), séché et pesé les poudres obtenues (mesure de m_{solide}), mesuré leur volume au pycnomètre à hélium (V_{solide}) et enfin calculé la densité $\rho_{solide} = m_{solide} / V_{solide}$. La densité calculée à partir de ces 17 échantillons est quasiment constante (à 2% près) quel que soit le type d'échantillon. La moyenne ($2,664 \text{ g cm}^{-3}$) et l'écart-type ($0,008 \text{ g cm}^{-3}$) de ces densités ont donc été utilisés pour l'ensemble des échantillons.

Les croûtes des bombes en croûte de pain étant souvent très fines ($< 1\text{-}2 \text{ cm}$), il a été impossible d'y couper un parallélépipède, hormis pour la bombe BCP1. Afin d'obtenir la vésicularité totale de ces croûtes, nous avons découpé pour chaque bombe un morceau de croûte de forme irrégulière que nous avons séché, pesé (m_{tot}), puis enduit de vernis afin d'empêcher l'hélium d'entrer dans les éventuels pores connectés avec l'extérieur. Enfin, nous avons mesuré le volume total (V_{tot}) de chaque morceau par pycnométrie à hélium et calculé la vésicularité totale en supposant que la masse et le volume de vernis étaient négligeables par rapport à ceux de l'échantillon.

La propagation des erreurs liées aux mesures de toutes les variables (Annexe 2) donnent lieu au maximum à des erreurs absolues de 2,1% sur la vésicularité totale, 2,0% sur la vésicularité connectée et de 2,8% sur la vésicularité isolée. L'expérience montre qu'en grande partie, l'erreur associée à la mesure du volume externe (V_{tot}) a la plus grande influence sur les erreurs attachées aux vésicularités et donc qu'il est important d'obtenir des parallélépipèdes ayant des angles les plus droits possibles afin de minimiser cette erreur.

III.3. Méthodologie utilisée pour la construction des distributions de vésicules et cristaux

III.3.1 Principe général et méthodologie préexistante

Les distributions surfacique et numérique des vésicules et des cristaux en fonction de leur taille (appelées couramment « distributions de tailles de vésicules et de cristaux »), ont été réalisées par analyses d'images en deux dimensions, comme c'est fréquemment le cas dans ce type d'études (Toramaru 1990 ; Mangan et al. 1993 ; Klug et Cashman 1994, 1996 ;

Klug et al. 2002 ; Adams et al. 2006 ; Shea et al. accepté). Même si cette approche semble être utilisée assez couramment, il n'existait pas à notre connaissance dans la littérature, de méthodologie complète et clairement détaillée pour construire une distribution de tailles de vésicules. Récemment, Shea et al. (accepté) ont détaillé cette méthodologie communément utilisée et y ont incorporé des critères pour choisir le nombre de grossissements, le nombre d'images à acquérir et la façon de combiner toutes les données afin d'obtenir une distribution de tailles complète à l'échelle de l'ensemble de l'échantillon. La méthodologie que nous avons utilisée diffère sensiblement de la leur, notamment parce que leur étude est parue une fois notre analyse texturale en deux dimensions pratiquement terminée. Notre méthode est expliquée dans ses étapes principales dans l'appendice de l'article soumis à Journal of Volcanology and Geothermal Research, mais est développée en détails dans les paragraphes suivants, et les différentes étapes qu'elle comporte sont comparées avec la méthodologie suggérée par Shea et al. (accepté).

III.3.2 Sélection des échantillons

Les distributions de tailles des vésicules réalisées en deux dimensions permettent de remonter à des informations en trois dimensions, via des principes de stéréologie. Dans notre étude, comme dans la plupart des études texturales comportant ce type d'analyse, il est considéré que les bulles étudiées sont sphériques, simplifiant ainsi les calculs stéréologiques. Pour cette raison, une sélection est effectuée au sein de nos échantillons, afin d'écarter de l'analyse en deux dimensions les échantillons présentant un allongement systématique des vésicules dans une direction (ce type d'échantillon est assez rare dans les dépôts vulcaniens de 1997). De même, étant donné que l'analyse porte sur une surface souvent relativement petite de l'échantillon (quelques dizaines de centimètres carrés), les clastes présentant une forte hétérogénéité dans la distribution des vésicules (ponces rubanées par exemple) ont aussi été écartés, ou alors, chacune des textures a été étudiée séparément (e.g. croûte et intérieur des bombes en croûte de pain).

III.3.3 Nombre et types de grossissements et d'images utilisés

La simple observation des échantillons à l'œil nu et au microscope montre qu'il existe une grande dispersion des vésicules en termes de taille dans les échantillons des dépôts d'éruptions explosives. Pour cette raison, plusieurs grossissements ainsi que plusieurs images par grossissement ont dû être utilisés.

III.3.3.a Nombre et valeurs des grossissements, théorie

Shea et al. (accepté), ont défini plusieurs critères pour choisir le nombre et la valeur des grossissements auxquels ils ont acquis leurs images. Ces deux paramètres dépendent en grande partie des tailles minimale et maximale des vésicules analysées et de la précision que l'on souhaite obtenir. Tout comme eux, nous avons décidé pour le grossissement le plus faible, de prendre une image qui soit au moins un ordre de grandeur plus large que les vésicules les plus grandes, soit un grossissement donnant des images de quelques dizaines de centimètres carrés. A l'opposé, pour définir la valeur du zoom le plus fort, Shea et al. (accepté) suggèrent que les images de ce grossissement englobe au moins 10 des vésicules les plus petites, afin d'avoir une statistique valable. Ces petites vésicules doivent également avoir une résolution d'au moins 10 pixels de diamètre à cette valeur de grossissement, afin de pouvoir être différenciées du bruit de l'image et ainsi obtenir une précision importante (1% d'erreur). Nous avons décidé d'augmenter cette valeur de taille minimale à 15 pixels de diamètre, afin d'augmenter encore la précision.

Le choix de ces grossissements requiert une connaissance a priori, au moins grossière, des tailles minimale et maximale des vésicules, et demande donc une observation préalable de façon macroscopique mais aussi au Microscope Electronique à Balayage (MEB). Nous avons déterminé que pour nos échantillons, les bulles avaient des tailles variant de quelques μm à plusieurs millimètres.

III.3.3.b Nombre d'images par grossissement, théorie

Il est important de trouver un bon compromis entre la précision que l'on veut obtenir d'une part, et le nombre d'images à acquérir et à analyser, d'autre part, le temps d'analyse étant souvent très long. Shea et al. (accepté) ont cherché à établir une méthode pour optimiser ce rapport précision/temps d'analyse. Ils ont trouvé ce compromis de manière empirique, en analysant le même échantillon trois fois, mais en changeant notamment le nombre d'images utilisées par grossissement (nombre d'images constant d'un zoom à l'autre, ou augmentant au fur et à mesure que l'on accroît le grossissement). Selon eux, la meilleure solution est de multiplier le nombre d'images à chaque fois qu'on augmente le niveau de grossissement, afin de garder un nombre de vésicules analysé par grossissement plus ou moins constant. Il doit aussi exister, entre deux grossissements consécutifs, une gamme de tailles pour laquelle les objets seront analysés sur les deux zooms à la fois (recouvrement), ceci afin de permettre une combinaison ultérieure des données pour calculer les distributions à l'échelle de l'échantillon.

III.3.3.c Grossissements et images, pratique

Notre stratégie d'acquisition des images s'est inspirée à la fois de cette étude de Shea et al. (accepté), mais aussi de celle d'Adams et al. (2006). Nos échantillons ont d'abord été étudiés de façon macroscopique afin d'analyser les plus grosses vésicules, celles ayant un diamètre de $\sim 300\ \mu\text{m}$ à $>1\ \text{cm}$. Une ou deux photographies à haute résolution d'une coupe de l'échantillon ont été réalisées, permettant d'obtenir des images de quelques cm^2 à quelques dizaines de cm^2 , correspondant à des grossissements de $\times 1,5$ à $\times 5$ environ selon les échantillons. Ces images seront appelées images macro par la suite.

Un petit parallélépipède a ensuite été découpé dans chaque échantillon préalablement imprégné de résine. L'imprégnation s'est faite sous vide à l'aide de résine (Epofix), colorée par un additif, puis chauffée afin d'être fluidifiée, permettant à la résine de pénétrer de manière optimale, et de s'infiltrer dans tous les pores de l'échantillon qui sont connectés avec l'extérieur. Les vésicules de l'échantillon qui ne contiennent pas de résine seront donc considérées comme isolées du reste du réseau. Cette distinction entre vésicules isolées d'une part, et connectées d'autre part, et notamment la signification de cette connectivité en termes de processus de nucléation, croissance et coalescence, est discutée dans l'article soumis à *Journal of Volcanology and Geothermal Research*.

Des lames minces ont ensuite été réalisées de façon aléatoire dans ces parallélépipèdes, ceux-ci étant supposés homogènes de part leur sélection. Puis ces lames minces ont été scannées à haute résolution, afin d'obtenir une ou deux images (appelées lame mince par la suite), avec un grossissement variant de $\times 6$ à $\times 15$ selon les échantillons. Les valeurs issues de l'analyse de ces images lame mince ont été couplées à celles issues de l'analyse des images macro (via une moyenne pondérée de la surface), pour obtenir la distribution des vésicules les plus grandes. Les processus de couplage des données acquises aux différents grossissements sont expliqués dans la partie III.3.6.

Enfin, des clichés ont été réalisés au MEB afin d'analyser toutes les vésicules dont le diamètre est inférieur à $300\ \mu\text{m}$. Pour couvrir l'ensemble de la gamme de tailles entre 0 et $300\ \mu\text{m}$, et en suivant en partie les pistes proposées par Shea et al. (accepté), 5 grossissements ont été utilisés ; $\times 27$, $\times 100$, $\times 200$, $\times 500$ et $\times 1\ 500$. La Figure 49 illustre l'ensemble des zooms utilisés et le nombre d'images acquises à chaque niveau. A chaque fois, les images prises pour un grossissement donné, sont incluses dans le grossissement précédent.

Pour chaque échantillon, au moins 20 images ont été analysées, permettant de rendre compte de l'hétérogénéité qu'il pourrait y avoir à petite échelle. Selon le critère de Shea et al.

Nous avons utilisé les logiciels de traitement d'images Adobe Photoshop et ImageJ, mais aussi écrit des codes en Matlab, dans le but d'obtenir rapidement des images binaires. De nombreux filtres ont été expérimentés, notamment sous ImageJ, et des codes ont été écrits pour essayer, par exemple, de détecter les parois des bulles, et les « suivre » sur l'ensemble de l'image, afin d'isoler chaque vésicule. Pour les images MEB, nous avons même réalisé des cartographies chimiques, et nous les avons analysées à l'aide du logiciel de traitement d'images géospatiales ENVI (analyses multi-spectrales), afin de faire ressortir les différents objets, grâce à la fois à leurs caractéristiques optiques, mais aussi chimiques. Cependant, quelle que soit la technique utilisée, il subsistait toujours quelques pixels mal interprétés et donc mal transformés, qui avaient pour conséquence de connecter artificiellement deux vésicules, ou au contraire en divisaient une en plusieurs. L'utilisation de filtres du type érosion ou dilatation ont eu pour conséquence d'arrondir les vésicules, modifiant ainsi leur forme ou/et leur surface, et donc ne convenaient pas. Ces erreurs demandaient un temps de correction très important, et finalement, l'analyse de chaque image s'est faite majoritairement de façon manuelle, à l'aide du logiciel Adobe Photoshop.

Pour les images macro et lame mince, la sélection des différents objets (vésicules et cristaux), s'est faite en parallèle d'une observation à l'œil nu, à la loupe binoculaire et au microscope optique, permettant de minimiser les éventuelles erreurs d'interprétation de la nature des différentes phases. Pour les images MEB, deux images ont été acquises à chaque fois, l'une en électrons rétrodiffusés et l'autre en électrons secondaires, chacun des deux types permettant de faire ressortir des caractéristiques particulières de l'arrangement vésicules-cristaux-verre, aidant à la sélection des différents objets. Sur chacune des images acquises, quel que soit le grossissement considéré, les objets ci-dessous ont été analysés.

- Cristaux

Sans surprise, il s'agit essentiellement de plagioclases, d'amphiboles, de pyroxènes et d'oxydes (Barclay et al. 1998, Murphy et al. 2000). Sur les images MEB, la sélection des plagioclases a parfois été délicate en raison de la difficulté à les différencier du verre de trempe. A l'opposé, les oxydes sont assez faciles à identifier, car ils apparaissent en blanc sur les images en électrons rétrodiffusés. Afin de mettre en évidence le rôle de la nucléation hétérogène dans nos échantillons, nous avons réalisé des distributions de tailles d'oxydes (surtout dans le but d'obtenir leur densité numérique), en plus des distributions de tailles des cristaux (cf. Giachetti et al. soumis).

- Vésicules connectées

Ces vésicules constituent un ou plusieurs réseaux dans l'échantillon, connecté au moins en partie avec l'extérieur. Sur les images MEB en électrons rétrodiffusés, on les distingue des vésicules isolées car elles sont remplies de résine colorée, qui apparaît en gris foncé sur ces images (Figure 50a, d).

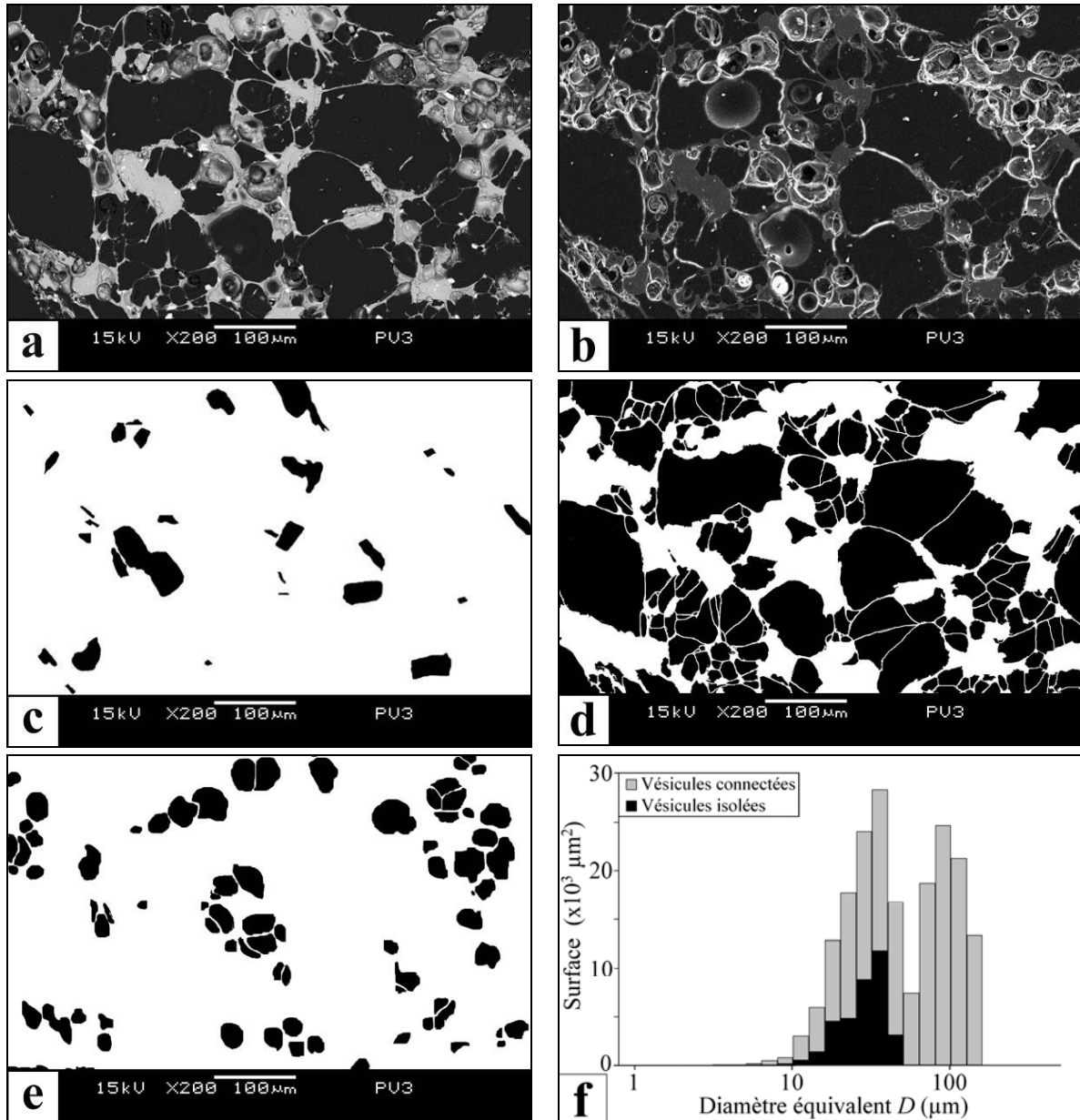


Figure 50. Exemple de binarisation d'une image MEB au grossissement $\times 200$ de l'échantillon PV3. (a) image en électrons rétrodiffusés, (b) image en électrons secondaires, (c) image binaire correspondant aux cristaux, (d) image binaire correspondant aux vésicules connectées, (e) image binaire correspondant aux vésicules isolées. L'histogramme (f) présente la fraction surfacique des vésicules en fonction de leur diamètre équivalent.

Lors de la fabrication de la lame mince, certaines parois de bulles ont été cassées, bien visibles au MEB (certains morceaux cassés se retrouvent au milieu des vésicules, Figure 50a).

Ces parois ont été reconstruites lors de l'analyse manuelle. De même, certaines parois sont tellement fines qu'elles n'apparaissent pas complètement aux zooms les plus faibles (notamment au zoom $\times 27$) et ont été alors reconstruites. Afin de rendre compte de l'état du magma juste avant la fragmentation, les vésicules ayant coalescé immédiatement avant la trempe et dont les parois ne sont pas complètement rétractées ont-elles aussi été « déconnectées », (Toramaru 1990 ; Klug et Cashman 1994 ; Klug et al. 2002). Cette procédure, certes parfois subjective, donne des informations utiles sur le dernier état de coalescence. Ainsi, dans notre étude, nous avons fait la distinction entre les vésicules qui ont été « déconnectées » manuellement et celles qui ne l'ont pas été, permettant de définir la gamme de tailles sur laquelle la coalescence était active juste avant la fragmentation.

- Vésicules isolées

Ces vésicules sont celles dont la résine est absente sur les images MEB car elles sont isolées du(des) réseau(x) de vésicules, et donc ne sont pas connectées avec l'extérieur, empêchant la résine de s'infiltrer. Elles ont un aspect un peu vitreux sur les images MEB en électrons rétrodiffusés (Figure 50a) et leurs parois ressortent fortement sur les images à électrons secondaires (Figure 50b, e).

Au total, de 930 à 4 750 cristaux et de 3 390 à 9 620 vésicules ont été analysés par échantillon. Cette étape de binarisation des images est commune à toutes les méthodes utilisées pour le calcul de distributions de tailles d'objets et constitue, à notre avis, l'étape la plus importante du calcul des distributions de tailles des vésicules. Il est à noter que la distinction entre vésicules connectées et vésicules isolées dans les distributions de tailles de vésicules est rarement réalisée.

III.3.6 Construction des distributions de tailles des cristaux et des vésicules

Une fois que les images binaires ont été obtenues pour tous les grossissements, les distributions de tailles des vésicules et des cristaux sont construites en quatre étapes distinctes :

III.3.6.a Etape 1. Distributions à l'échelle d'une image

Chaque image de chaque grossissement est traitée individuellement dans un premier temps, à l'aide du logiciel gratuit ImageJ (<http://rsbweb.nih.gov/ij/>). Celui-ci permet d'obtenir les caractéristiques de chacun des objets présents sur une image binaire. Il peut fournir notamment l'aire A_p (pixels) de chaque objet, qui, avec l'aide de l'échelle e ($\mu\text{m px}^{-1}$) de l'image, permet de calculer l'aire A en μm^2 :

$$A = A_p \times e^2 \quad [40]$$

Dans la mesure où les échantillons ont été choisis de sorte que les vésicules ne présentent pas d'allongement évident dans une direction donnée, nous avons assimilé celles-ci à des sphères, et donc, en deux dimensions, à des disques (la même hypothèse a été utilisée pour les cristaux, et sa validité est discutée dans le paragraphe III.3.7.c. A partir de l'aire A (μm^2) de chaque objet, un diamètre équivalent D (μm), d'un disque de surface A , a donc été calculé grâce à l'équation :

$$D = 2 \times \sqrt{\frac{A}{\pi}} \quad [41]$$

Les distributions de la surface et de la densité numérique des différents objets en fonction de leur taille ont été réalisées pour chaque image, en fonction du diamètre équivalent D (e.g. Figure 50f pour une image MEB au zoom $\times 200$ de l'échantillon PV3), en regroupant les vésicules par classes de tailles. Les classes de tailles utilisées pour ce travail sont des classes logarithmiques (de 0 à 1 cm par incrément de $10^{0,1}$), identiques à celles utilisées par Klug et Cashman (1994 et 1996), Klug et al. (2002) ou encore Shea et al. (accepté) par exemple. En effet, les vésicules couvrant plusieurs ordres de grandeur en termes de taille, la représentation en échelle logarithmique est ici indispensable.

Un code numérique a été créé à l'aide du logiciel de programmation Matlab, afin de déterminer pour chaque classe de tailles, le nombre d'objets N (cristaux ou vésicules) présents dans la classe, et la surface totale que représentent ces N objets. La probabilité qu'un gros objet soit coupé par le bord de l'image est plus grande que celle d'un petit objet, et il faut donc appliquer une correction à N (Miles 1974 ; Lantuéjoul 1980). Pour chaque classe de tailles et pour une image rectangulaire de surface $W \times H$, le nombre corrigé d'objets de diamètre D est alors :

$$N_a = \sum \frac{WH}{(W-w)(H-h)} \quad [42]$$

Où W et H sont respectivement la longueur et la largeur de l'image considérée, et w et h sont les diamètres de Ferret de l'objet qui sont respectivement la plus grande et la plus petite distance entre deux droites parallèles et tangentes à l'objet (fournis par ImageJ). Pour chaque classe de diamètre, une densité numérique corrigée, un peu plus grande que la densité brute,

est ainsi calculée. Cette correction a en général un faible impact sur les distributions de tailles de bulles, et n'agit de manière visible que sur les objets les plus gros d'une image considérée, comme le montre la Figure 51.

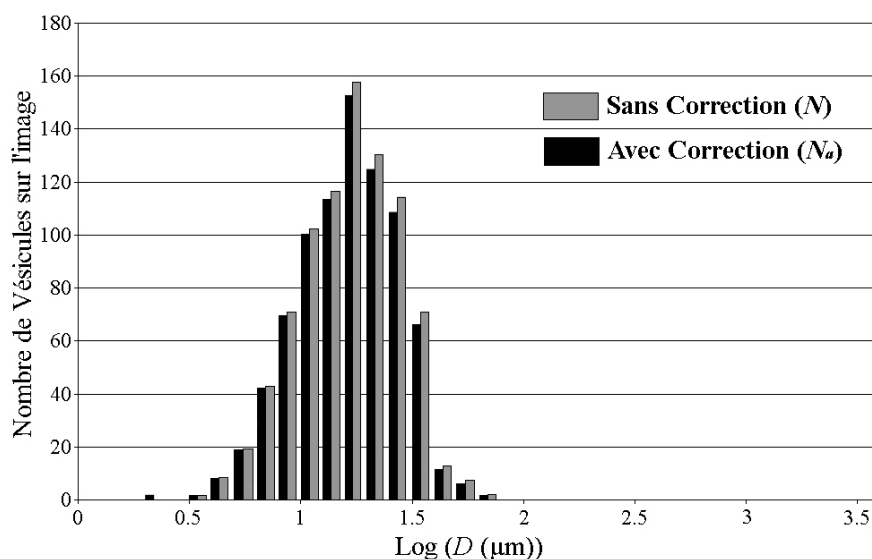


Figure 51. Influence de la correction de Miles (1974) et Lantuéjoul (1980) pour les vésicules coupées par les bords de l'image. L'influence de la correction est faible et est concentrée sur les objets les plus gros.

Pour chaque image de chaque zoom et de chaque échantillon, les distributions de la densité numérique et de la surface des cristaux, des vésicules connectées et des vésicules isolées en fonction de leurs tailles sont donc calculées. Cette étape est commune à notre méthode et à la méthode « classique », détaillée par Shea et al. (accepté).

En plus de la surface, ImageJ peut fournir d'autres informations sur l'objet, notamment sa circularité (C). Ce paramètre égal à $4\pi A / P^2$ (où A est la surface de l'objet et P son périmètre) donne une information sur la forme de l'objet. Un cercle parfait aura une valeur de $C = 1$, tandis qu'une déformation de ce cercle (aplatissement, torsion, connexion avec un autre cercle...) aura pour conséquence de diminuer C et, au maximum, de le faire tendre vers 0. Ce paramètre a donc été mesuré pour chaque vésicule, et une distribution de la circularité moyenne des deux types de vésicules (isolée ou connectée) a été réalisée en parallèle des distributions de la densité numérique et de la surface.

III.3.6.b Etape 2. Distributions à l'échelle d'un grossissement

Les distributions de tailles des vésicules et des cristaux obtenues pour toutes les images d'un même grossissement ont été moyennées, afin d'obtenir une distribution de tailles moyenne de chaque type d'objet à l'échelle du grossissement. Cette étape a pour effet notamment, d'atténuer les éventuelles petites hétérogénéités de distributions de tailles ou de

forme pouvant exister à cette échelle, en considérant que les hétérogénéités de forme sont orientées aléatoirement.

Nous avons effectué un test sur deux images d'un même échantillon, prises au même grossissement, mais dont les textures paraissent différentes, afin d'évaluer l'impact de cette différence de texture sur la distribution de tailles des vésicules. Une des deux zones (Figure 52a) est caractérisée de nombreuses grandes vésicules ($>100\text{ }\mu\text{m}$), souvent allongées, et peu de cristaux de grande taille ; tandis que l'autre zone (Figure 52b), présente des vésicules plus petites, plus rondes, et plus de gros cristaux. Cependant, les distributions de tailles des vésicules de ces deux images (Figure 52c, d), montrent que cette impression de différence n'est que visuelle, puisque les distributions des vésicules sont très similaires, avec notamment la présence des mêmes minimums ($\sim 15\text{--}20\text{ }\mu\text{m}$ et $\sim 80\text{ }\mu\text{m}$). Ce test renforce l'idée que les échantillons choisis sont assez homogènes, même à petite échelle.

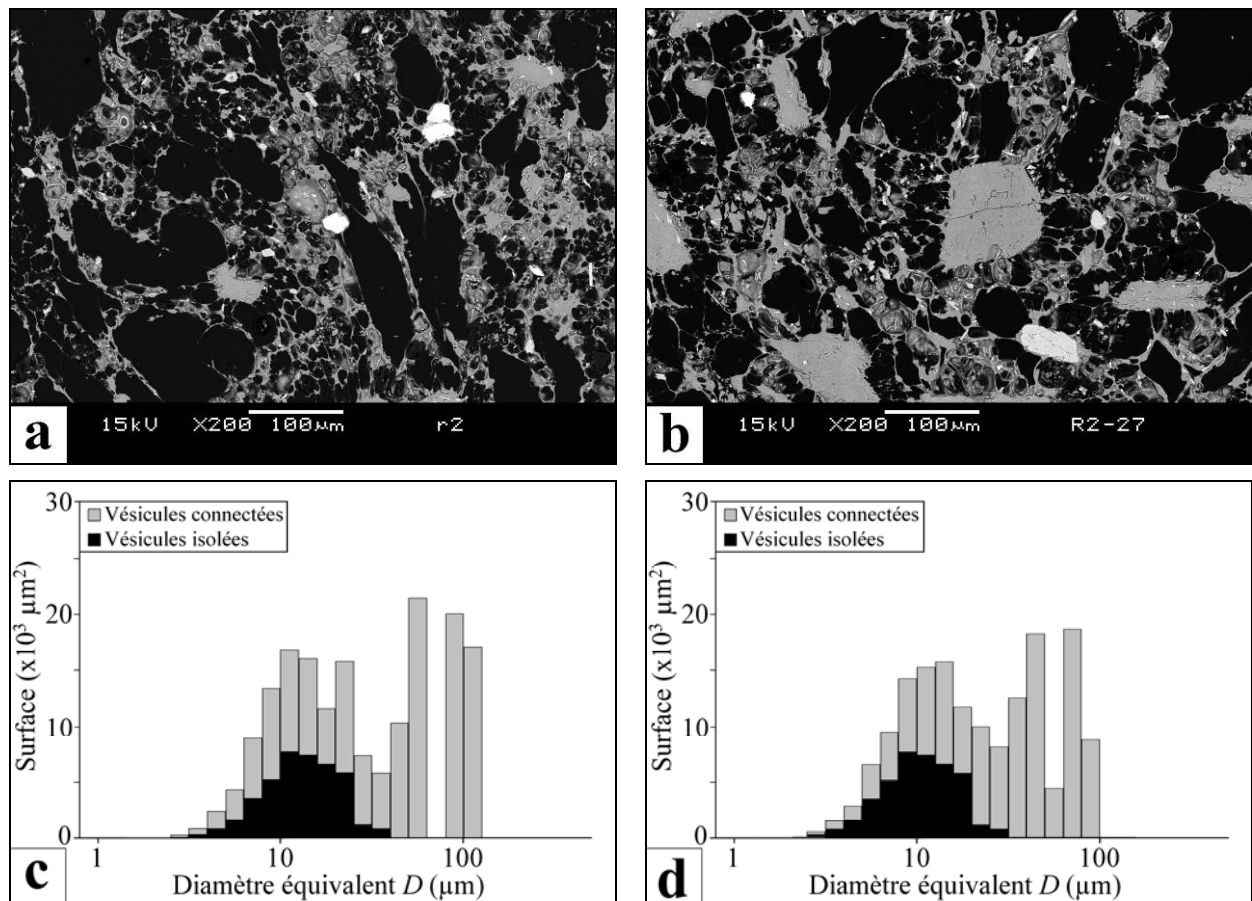


Figure 52. Impact de l'hétérogénéité à petite échelle sur les distributions de tailles de vésicules. (a, b) Images MEB en électrons rétrodiffusés et au grossissement $\times 200$ de deux zones visuellement différentes d'un point de vue texture dans l'échantillon R2. (c, d) Distributions de la surface occupée par les vésicules en fonction du diamètre équivalent des images (a) et (b) respectivement. Ce test montre que l'impression de différence de texture est surtout visuelle, les distributions étant très similaires.

Cette seconde étape permet donc d'obtenir les distributions de la densité numérique (N_a), de la surface et de la circularité des différents objets (vésicules isolées, vésicules connectées et cristaux) en fonction du diamètre équivalent et à l'échelle d'un grossissement. Cette étape se fait de la même façon dans la méthodologie utilisée dans les autres études texturales incluant des distributions de tailles de vésicules (Shea et al. accepté). Elle permet aussi de vérifier qu'il existe bien des gammes de tailles où les données de plusieurs grossissements se recouvrent (Figure 53). Ce recouvrement est indispensable pour construire les distributions à l'échelle de l'échantillon entier, comme expliqué par la suite.

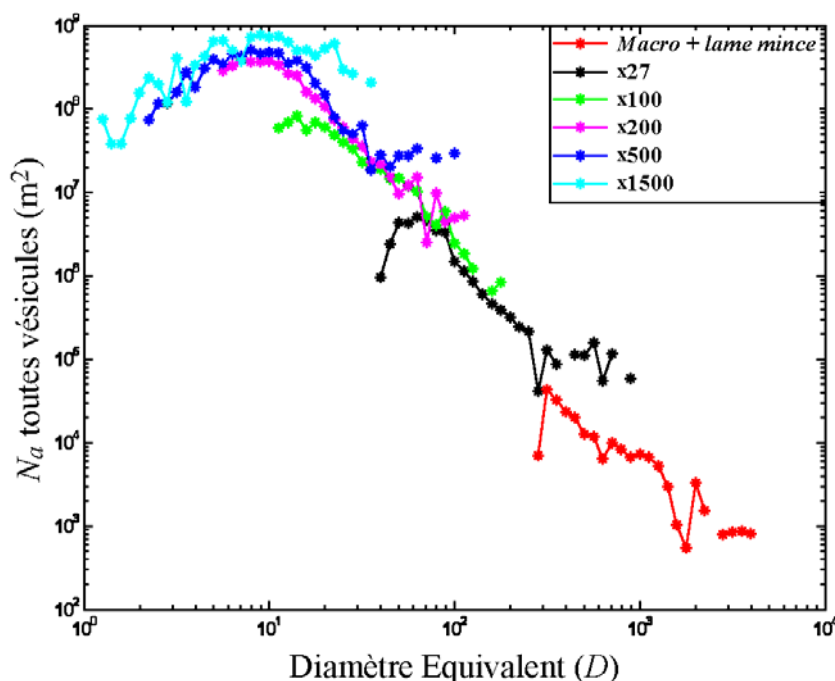


Figure 53. Distributions de la densité numérique de vésicules, pour tous les grossissements d'un même échantillon (R2). Les données de certains grossissements se recouvrent d'autres sur certaines gammes de tailles, permettant la combinaison de toutes les données afin de construire une distribution de tailles à l'échelle de l'échantillon (étape 3).

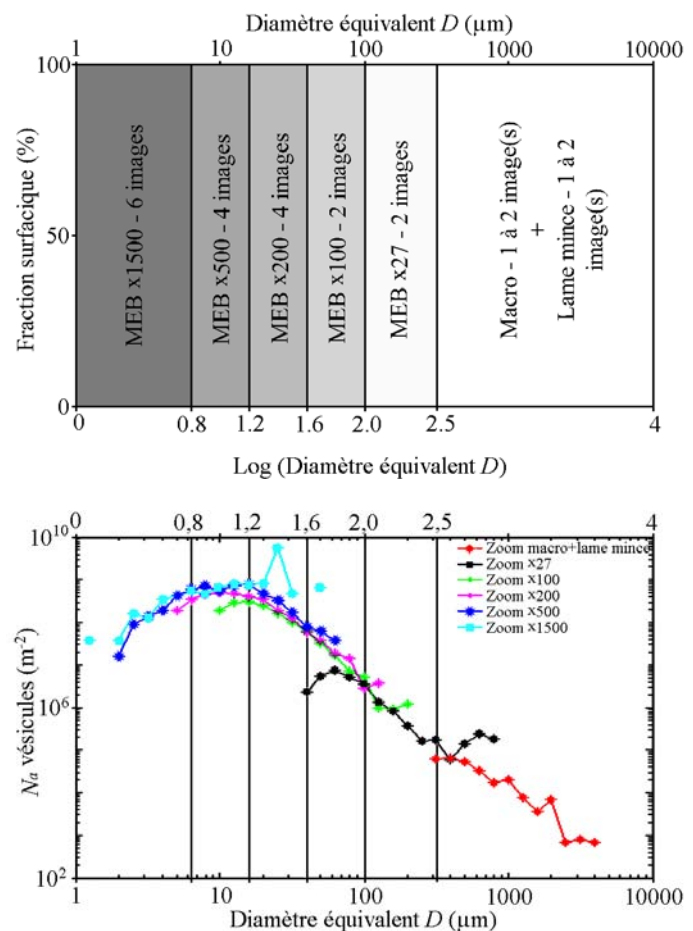
III.3.6.c Etape 3. Distributions à l'échelle de l'échantillon

Etant donné que chaque grossissement ne représente qu'une partie de toute la gamme de tailles, il faut coupler les données de tous les grossissements afin d'établir une distribution de tailles à l'échelle de l'échantillon. En effet, un objet de quelques μm ne sera pas visible sur les images macro + lame mince, et inversement, une image MEB au zoom $\times 1500$ ne sera pas représentative d'un objet de plusieurs centaines de μm .

Afin de réaliser ce recouvrement des données, il a d'abord fallu choisir dans la gamme de tailles sur laquelle les données de deux grossissements se recoupent (e.g. ~ 40 à $\sim 200 \mu\text{m}$ pour les zooms $\times 27$ et $\times 100$, Figure 53), à quelle taille précise va se faire la transition. Afin de nous aider dans le choix de ces limites, nous avons gardé les deux critères

concernant le « domaine de validité » d'un grossissement, à savoir : un grossissement permet de voir un objet seulement s'il est composé d'au moins 15 pixels de diamètre sur les images de ce zoom ; un grossissement est représentatif d'objets qui font au maximum 1% de la surface de l'image. L'application de ces deux critères permet dans un premier temps de réduire les zones de recouvrement. Ensuite, nous avons choisi la limite de sorte qu'elle corresponde à une borne d'une classe de tailles, et qu'elle permette d'éviter un saut important dans les valeurs de N_a d'un zoom à l'autre (Figure 54). Ce choix se fait de la même façon dans la méthodologie détaillée par Shea et al. (accepté).

Figure 54 (haut) Limites choisies pour la construction des distributions à l'échelle de l'échantillon. Les limites ont été fixées à $\text{Log}(D) = 0,8 ; 1,2 ; 1,6 ; 2,0$ et $2,5$ (e.g. les données issues de l'analyse des images au grossissement $\times 200$ et correspondant à des classes de tailles s'étalant entre $15,8 \mu\text{m}$ ($\text{log}(D) = 1,2$) et $39,8 \mu\text{m}$ ($\text{log}(D) = 1,6$), ont été utilisées pour la construction des distributions de tailles à l'échelle de l'échantillon). (bas) Distributions de la densité numérique de vésicules en fonction de la taille et issues de tous les grossissements, pour l'échantillon AMO32. Les limites choisies entre les zooms pour la construction de la distribution complète figurent sous forme de droites verticales.



La différence majeure entre notre méthode et celle communément utilisée réside dans la façon de combiner les données, une fois les limites entre grossissements choisies. Cette étape est importante car la façon de fusionner les données issues des différents grossissements va avoir un impact sur la distribution de la surface, mais surtout sur la distribution de la densité numérique de vésicules ou de cristaux.

La méthode classique effectue cette étape en utilisant les densités numériques (N_a). Elle permet d'obtenir de façon simple les distributions des N_a (pour les cristaux et pour les

vésicules) à l'échelle de l'échantillon : pour chaque classe de tailles donnée, le N_a de la distribution à l'échelle de l'échantillon est celui correspondant au grossissement qu'on a choisi de garder pour cette classe de tailles. Cette méthode a l'avantage d'être simple, rapide, et de produire des distributions de N_a plutôt lisses. Cependant, elle ne semble pas corriger, à notre connaissance, la présence de phénocristaux et de grandes vésicules, ce qui va avoir tendance à surestimer le nombre de petits objets (cristaux et vésicules).

Notre méthode est plus complexe, et repose sur l'utilisation des surfaces, et non des densités numériques. Elle consiste à normaliser à l'image la plus grande (image du grossissement macro + lame mince), la surface occupée par les vésicules et les cristaux de chaque classe de tailles, en corrigeant à chaque fois pour les objets plus gros.

Dans le début de cette étape, nous avons fixé deux limites (L_{inf} et L_{sup} respectivement inférieure et supérieure) pour chaque grossissement X (e.g. $L_{inf} = 1,2$ et $L_{sup} = 1,6$ pour $X = \text{MEB} \times 200$, cf. Figure 54). La normalisation des données se fait en multipliant les surfaces occupées par les différents objets Obj (i.e. cristaux et vésicules) de toutes les classes de chaque grossissement X , par le facteur R défini par :

$$R = \frac{S_{Macro} - S_{Obj > L_{sup}}}{S_X - S_{ObjX > L_{sup}}} \quad [43]$$

Avec S_{Macro} qui est la surface de l'image macro + lame mince, S_X qui est la surface de l'image du grossissement X , $S_{Obj > L_{sup}}$ qui est la surface normalisée à S_{macro} de tous les objets plus grands que L_{sup} présents sur les images des grossissements plus faibles que X , et $S_{ObjX > L_{sup}}$ qui est la surface des objets présents dans X et plus grands que L_{sup} . Cette normalisation se fait en commençant par le zoom le plus faible (zoom macro+lame mince pour lequel $R = 1$) et s'applique en descendant vers les zooms les plus forts, jusqu'au grossissement $\times 1500$.

Par exemple, pour l'échantillon PV3, la surface de l'image macro + lame mince ($= S_{Macro}$) est de $4,18 \times 10^9 \mu\text{m}^2$. La surface de l'image du zoom immédiatement supérieur à macro + lame mince, qui est le grossissement $\text{MEB} \times 27$ ($= S_X$), est de $1,44 \times 10^7 \mu\text{m}^2$. La limite supérieure de ce grossissement $\text{MEB} \times 27$ ($= L_{sup}$) a été fixée à $\text{Log}(D) = 2,4$ soit $D \sim 251,2 \mu\text{m}$. Sur toutes les images des grossissements plus faibles que $\text{MEB} \times 27$ (c'est-à-dire sur l'image macro + lame mince), la surface représentée par les objets $> 251,2 \mu\text{m}$ ($= S_{Obj > L_{sup}}$) est de $1,53 \times 10^9 \mu\text{m}^2$. Sur l'image $\text{MEB} \times 27$, la surface représentée par les objets $> 251,2 \mu\text{m}$ ($= S_{ObjX > L_{sup}}$) est de $3,97 \times 10^6 \mu\text{m}^2$. Le coefficient R est donc de $(4,18 \times 10^9 -$

$1,53 \times 10^9 / (1,44 \times 10^7 - 3,97 \times 10^6) = 254,07$. Pour chaque classe de tailles de vésicules et de cristaux du grossissement MEB $\times 27$ comprise entre L_{inf} et L_{sup} , en multipliant la surface (et le nombre) des objets par R , on normalise cette surface (et ce nombre) par rapport à la surface de l'image macro + lame mince, en tenant compte de l'existence de vésicules et cristaux plus grands que L_{sup} . La même opération est ensuite appliquée au zoom immédiatement supérieur (MEB $\times 100$) et ainsi de suite jusqu'au zoom MEB $\times 1500$.

En ne conservant pour un grossissement donné que les valeurs situées entre ses limites L_{inf} et L_{sup} , et en normalisant toute la distribution ainsi obtenue à 1, on obtient la fraction surfacique qu'occupe chaque classe de tailles de cristaux et de vésicules à l'échelle de l'échantillon. En appliquant les mêmes facteurs R et la même normalisation aux distributions de densités numériques (N_a), on obtient la distribution de la densité numérique de cristaux et de vésicules en fonction de leur taille à l'échelle de l'échantillon. Il est à noter que la densité numérique s'exprime souvent par unité de surface de verre (normalisation à la surface totale moins la surface de cristaux et de vésicules), et sera donc exprimée ainsi dans la suite de la méthodologie.

Concernant la distribution de la circularité des vésicules, les données issues des différents grossissements sont simplement coupées au niveau des différentes L_{inf} et L_{sup} , afin de construire la distribution de la circularité à l'échelle de l'échantillon.

III.3.6.d Etape 4. Distributions en 3D : conversion 2D – 3D, stéréologie

Toutes les données obtenues précédemment sont des données en deux dimensions : fraction surfacique occupée par chaque classe de vésicules et de cristaux et densité numérique de cristaux et de vésicules par unité de surface de verre résiduel. Des équations existent pour exprimer, via certaines hypothèses, ces données par unité de volume.

- Fraction surfacique - Fraction volumique :

L'orientation des vésicules étant supposée aléatoire et les échantillons étant sélectionnés notamment pour leur homogénéité, la fraction surfacique (2D) est supposée être directement égale à la fraction volumique (3D) (Klug et Cashman 1994, 1996 ; Klug et al. 2002). Il n'y a donc aucun calcul de transition à effectuer et les distributions de surface sont utilisées en tant que distributions de volume.

- Densité numérique par unité de surface (N_a) – par unité de volume (N_v) :

Au moins deux méthodes existent pour obtenir les densités numériques par unité de volume (N_v) à partir des densités numériques par unité de surface (N_a).

La première méthode, proposée par Cheng et Lemlich (1983) permet d'obtenir la densité numérique par unité de volume N_v simplement en divisant la densité numérique par unité de surface N_a par le diamètre moyen D_m de chaque classe :

$$N_v = \frac{N_a}{D_m} \quad [44]$$

Avec N_a qui est la densité numérique par unité de surface obtenue précédemment et D_m qui est la moyenne entre les bornes inférieure et supérieure de la classe de diamètres considérée. Cette méthode, très simple et rapide, ne requiert pas d'hypothèse sur la forme des vésicules. Cependant, elle ne tient pas compte de la probabilité qu'une sphère a d'être coupée par un plan au niveau de son plus grand diamètre (appelé « cut effect », Sahagian et Proussevitch 1998).

Il est facile de comprendre qu'une vésicule sphérique, lorsqu'elle est coupée aléatoirement par un plan, a très peu de chance d'être coupée dans son diamètre réel, et est coupée le plus souvent dans un diamètre plus petit. Par conséquent, les distributions de tailles des vésicules en 2D ne sont pas représentatives de la distribution réelle, en 3D. Sahagian et Proussevitch (1998) ont déterminé numériquement, pour une forme de vésicule donnée (sphère, ellipsoïde...), et pour des classes de tailles géométriques ou linéaires, les probabilités d'intersection d'une vésicule. Ils ont notamment estimé la probabilité d'intersection d'une sphère de diamètre égal à 1, pour 12 classes logarithmiques d'intervalle $10^{-0,1}$. Une sphère de diamètre 1 a ainsi environ 60,75% de chance d'être intersectée selon un diamètre compris entre 0,794 et 1, puis 16,83% de chance que le diamètre d'intersection soit compris entre 0,631 et 0,794, etc. (Figure 55).

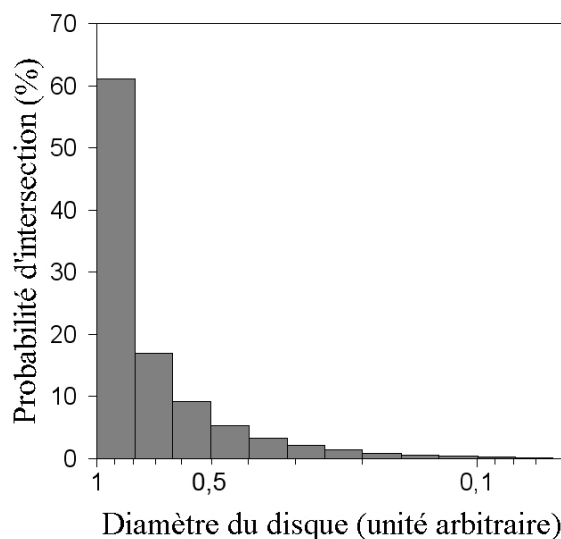


Figure 55. Probabilité d'intersection d'une sphère de diamètre égal à 1, pour 12 classes logarithmiques d'intervalle $10^{-0,1}$ (d'après les données de Sahagian et Proussevitch, 1998).

Grâce à ces probabilités, Sahagian et Proussevitch (1998) ont calculé des coefficients de conversion (α), permettant de tenir compte de cet effet de coupe et ainsi, de remonter à la distribution réelle en 3D à partir de données issues de l'analyse en 2D. Ainsi, pour i classes de tailles (avec $i = 1$ pour la classe de tailles les plus grandes), ils obtiennent :

$$N_{vi} = \frac{1}{\overline{H}_i} \left(\alpha_1 N_{ai} - \sum_{j=1}^{i-1} \alpha_{j+1} N_{a(i-j)} \right) \quad [45]$$

Où N_{vi} est la densité numérique de vésicules (ou cristaux) par unité de volume de la classe de tailles i considérée, \overline{H}_i est l'équivalent du diamètre moyen de la classe de tailles i , N_{ai} est la densité numérique de vésicules (ou cristaux) par unité de surface de la classe de tailles i considérée et obtenue par analyse en 2D, et α_i est le coefficient de conversion pour la classe i déterminé par Sahagian et Proussevitch (1998, leur Tableau 4).

Cette correction s'applique des tailles les plus grandes vers les tailles les plus petites. Cette méthode plus contraignante mais théoriquement plus juste que celle de Cheng et Lemlich (1983), requiert de connaître la forme générale des objets dont on veut convertir la distribution. Elle a aussi l'inconvénient de produire parfois des N_v négatifs, comme expliqué par Sahagian et Proussevitch (1998). L'application de cette correction pour le « cut effect », a souvent pour conséquence de diminuer le nombre de petites vésicules au profit des plus grosses, par rapport à la méthode Cheng et Lemlich (1983).

Un code Matlab a été écrit pour pouvoir, à partir des données 2D brutes, calculer les distributions de densités numériques des cristaux et des vésicules par unité de surface, puis de les convertir par unité de volume, en utilisant l'une ou l'autre des deux méthodes de conversion 2D-3D. Une comparaison des densités numériques des cristaux et des vésicules obtenues par les deux méthodes sur nos échantillons, montre que ces densités sont similaires à 5% dans la majorité des cas (15% au maximum, cf. Giachetti et al. soumis). De plus, comme l'illustre la Figure 56 ci-dessous, la distribution de la densité numérique des vésicules est quasiment identique, les quelques différences n'étant pas prises en compte pour les interprétations que nous faisons de ces distributions.

Il est possible de calculer une distribution de la fraction volumique qu'occupe chaque classe de tailles de vésicules, à partir de ces distributions de densité numérique, et en utilisant le diamètre moyen de chaque classe. La méthode couramment utilisée pour construire les distributions de tailles de vésicules (Shea et al. accepté) utilise cette technique. Cependant, ce

calcul donne souvent une vésicularité totale (obtenue en intégrant la distribution sur toute la gamme de tailles), qui est beaucoup plus grande que la vésicularité réelle (obtenue indépendamment), et la mesure indépendante est souvent utilisée pour normaliser toute la distribution. Cette incapacité de pouvoir comparer directement la vésicularité obtenue par analyses en 2D avec une vésicularité obtenue de façon indépendante (pycnométrie à hélium, technique d'immersion...) est à notre avis, un des points faibles de la méthode « classique ».

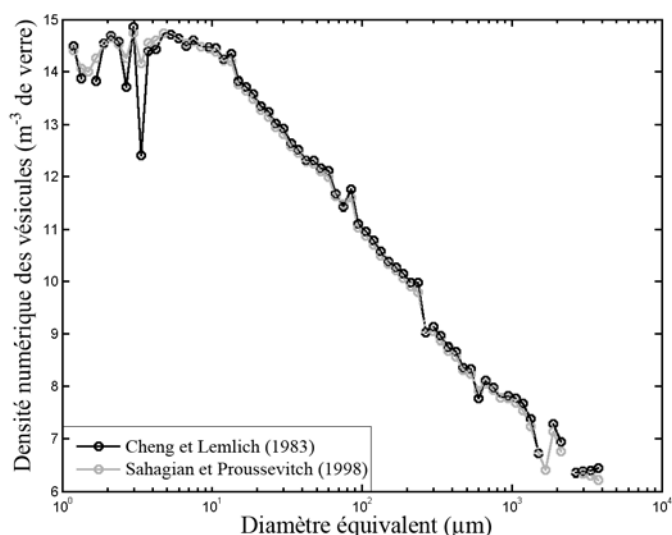


Figure 56. Influence de la méthode de conversion 2D-3D choisie. Distribution de la densité numérique de vésicules par unité de volume de verre en fonction de la taille pour l'échantillon R2, obtenue en utilisant soit la conversion 2D-3D proposée par Cheng et Lemlich (1983), soit celle proposée par Sahagian et Proussevitch (1998).

III.3.7 Commentaires sur la méthodologie employée

III.3.7.a Efficacité de notre méthode

La méthode que nous avons utilisée, certes plus compliquée et plus longue, a l'avantage de prendre en compte pour chaque grossissement, la présence de cristaux et de vésicules plus grands que ceux visibles sur le grossissement en question. De plus, par simple intégration de la distribution des fractions volumiques sur l'ensemble de la gamme de tailles, la vésicularité et la cristallinité d'un échantillon peuvent être obtenues. Ceci permet de tester la validité de notre méthode par une comparaison avec une mesure indépendante de la vésicularité. La comparaison entre la vésicularité obtenue par cette méthode et celle obtenue par pycnométrie à hélium sur le même échantillon (et considérée comme vraie), montre que l'écart n'est que de 4% au maximum (Figure 57). Sur cette même figure sont reportés trois échantillons de Shea et al. (accepté) dont les images ont été analysées par Thomas Shea mais pour lesquels nous avons appliqué notre méthode pour construire la distribution de tailles des vésicules. Pour ces trois échantillons (provenant de Makapuu, Hawaii ; Villarica, Chili ; et Vésuve, Italie), la vésicularité mesurée indépendamment a été calculée à partir de la densité, par la technique d'immersion (Shea et al. accepté). Là encore, la comparaison montre que la vésicularité obtenue par l'analyse d'images en deux dimensions est très proche de la

vésicularité réelle. Les petites différences entre vésicularité 2D et vésicularité vraie peuvent être dues à de petites hétérogénéités au sein des échantillons. Il est à noter que notre méthode fonctionne aussi bien pour les échantillons les plus denses ($\phi < 10\%$) que les plus vésiculés ($\phi > 76\%$).

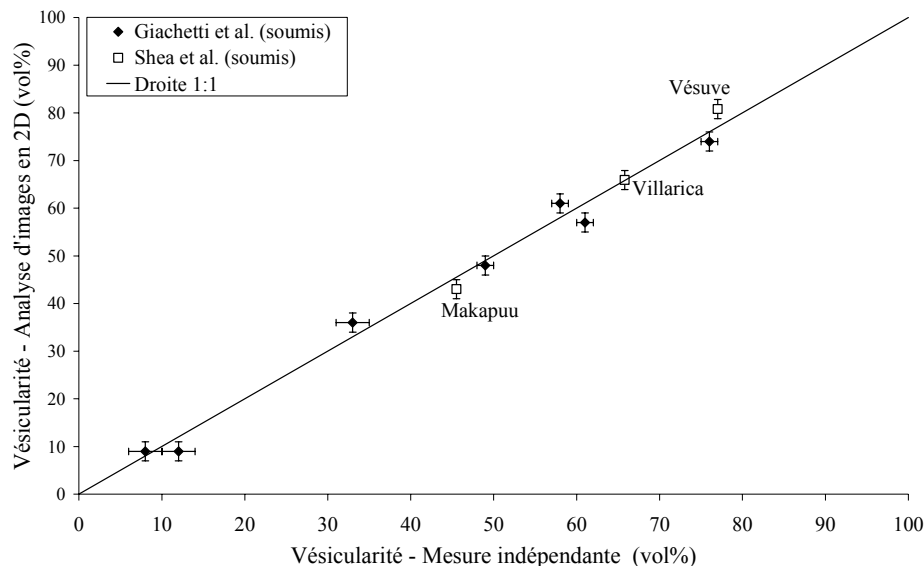


Figure 57. Test de la validité de la méthodologie employée pour la construction des distributions de tailles des cristaux et des vésicules. Comparaison entre la vésicularité obtenue par notre méthode d'analyse d'images en 2D et celle obtenue indépendamment par pycnométrie à hélium (nos échantillons) ou par technique d'immersion (échantillons de Thomas Shea).

III.3.7.b Erreur associée aux données issues des distributions de tailles

Compte-tenu de la comparaison entre la vésicularité « vraie » et la vésicularité obtenue par les analyses d'images en 2D (Figure 57), nous avons estimé que l'erreur absolue, associée à la mesure de la vésicularité et de la cristallinité via notre méthode, était de $\pm 2\%$. Il est à noter que d'un point de vue surface (et donc volume), une erreur commise sur une vésicule analysée au zoom macro + lame mince (oubli de quelques pixels sur une vésicule par exemple), aura un impact important sur la distribution de surface, notamment car cela aura un impact sur les facteurs normalisant R (Equation [45]). Elle aura aussi un impact sur la densité numérique, via l'intervention des R dans les calculs des distributions numériques. En revanche, une telle erreur de quelques pixels sur une vésicule analysée sur le grossissement $\times 1\,500$, aura un impact négligeable sur la distribution de surface.

L'erreur sur les densités numériques de cristaux et de vésicules est elle, beaucoup plus difficile à estimer. En effet, l'intervention des facteurs normalisant R , aura pour effet de propager fortement une erreur commise sur le grossissement $\times 1500$ (vésicule oubliée, ou artificiellement rajoutée lors du traitement des images), alors que la même erreur commise sur le zoom macro+lame mince, ne changera quasiment rien au nombre total de vésicules. Afin

d'évaluer tout de même cette erreur, nous avons considéré arbitrairement que le nombre de vésicules réellement comptées sur chaque image (avant la normalisation par R), était entaché d'une erreur de $\pm 5\%$. Etant donné l'intervention du facteur R , cette erreur n'est pas directement de $\pm 5\%$ sur les densités numériques par unité de volume de verre, et varie d'un échantillon à l'autre. La propagation de cette erreur, donne une erreur relative sur la densité numérique totale par unité de volume de verre résiduel, quelle que soit la méthode de conversion 2D-3D utilisée, qui est de $\pm 15\%$ au maximum pour les vésicules et au maximum de $\pm 3\%$ pour les cristaux.

III.3.7.c Implications de l'hypothèse de sphéricité pour les cristaux

Etant donné que la sélection des cristaux est indispensable pour construire les distributions de tailles des vésicules pour corriger de leur effet, nous avons calculé les distributions de tailles des cristaux. Contrairement aux vésicules, les cristaux ne peuvent pas être considérés au premier abord comme sphériques. L'hypothèse de sphéricité est utilisée dans notre méthode, à la fois pour classer les objets selon leurs tailles, et lors de la conversion 2D-3D pour le choix des coefficients de conversion α_i dans la méthode de Sahagian et Proussevitch (1998), qui dépendent de la forme de l'objet (sphère, cube, ou ellipsoïde).

Pour la première utilisation (classer les objets), le fait de considérer les cristaux sphériques n'influe ni sur la distribution de la fraction surfacique, ni sur celle de la densité numérique en 2D. Nous aurions très bien pu, pour construire les distributions de tailles, travailler avec des classes de surface au lieu de classe de diamètre. L'utilisation des diamètres rend simplement la lecture des diagrammes plus facile. En revanche, dans la conversion 2D-3D avec la méthode de Sahagian et Proussevitch, le choix de la forme des objets est important puisqu'il conditionne les coefficients de conversion α_i qu'il faut utiliser. Nous avons gardé une forme sphérique pour les cristaux surtout car il aurait fallu, en fonction de chaque espèce minérale, changer la forme supposée des cristaux, ce qui était trop fastidieux pour notre propos. En effet, celle-ci change d'une espèce minéralogique à l'autre : prisme allongé pour les amphiboles, parallélépipède pour les plagioclases, prisme peu allongé pour l'augite, etc.

Nous avons tout de même testé, en plus du cas où tous les cristaux sont sphériques, l'hypothèse selon laquelle tous les cristaux ont une forme cubique. Nous avons alors recalculé pour l'échantillon R2 (choisi arbitrairement), la densité numérique totale de cristaux par unité de volume, en utilisant les coefficients de conversion donnés par Sahagian et Proussevitch (1998) pour une forme cubique. Nous obtenons une densité numérique de cristaux pour cet échantillon, de $407 \pm 6 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ de verre pour une forme de cristaux sphérique et de

$422 \pm 4 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ de verre pour une forme cubique. Au premier ordre, le choix dans la forme du cristal moyen ne semble donc pas avoir un impact très important sur la densité numérique totale de cristaux.

III.3.7.d Influence du nombre de classes de tailles choisi

L'interprétation des distributions de tailles de vésicules peut être faussée par la largeur (et donc le nombre) des classes de tailles choisie. En effet, en diminuant le nombre de classes de tailles, on peut transformer deux populations de vésicules en une seule, et à l'inverse, on peut créer des populations plus ou moins artificielles en augmentant le nombre de classes. Cet artefact peut avoir un impact important car les différentes populations de vésicules reconnues donnent souvent lieu à des interprétations en termes de processus. Lors de la programmation du code permettant de construire les distributions à partir des données brutes, nous avons inséré la possibilité de changer la largeur des classes logarithmiques.

Nous avons ainsi testé plusieurs largeurs de classes de tailles différentes sur l'échantillon R2, avec des intervalles de $10^{-0,05}$, $10^{-0,1}$, $10^{-0,2}$ et $10^{-0,3}$, correspondant à un total de 80, 40, 20 et 13 classes respectivement. La Figure 58 montre que l'interprétation que nous avons faite pour cet échantillon (présence d'une population de larges vésicules, d'une population de petites vésicules et d'une population intermédiaire adossée à la population de petites vésicules), reste valable quel que soit le nombre de classes de tailles utilisé.

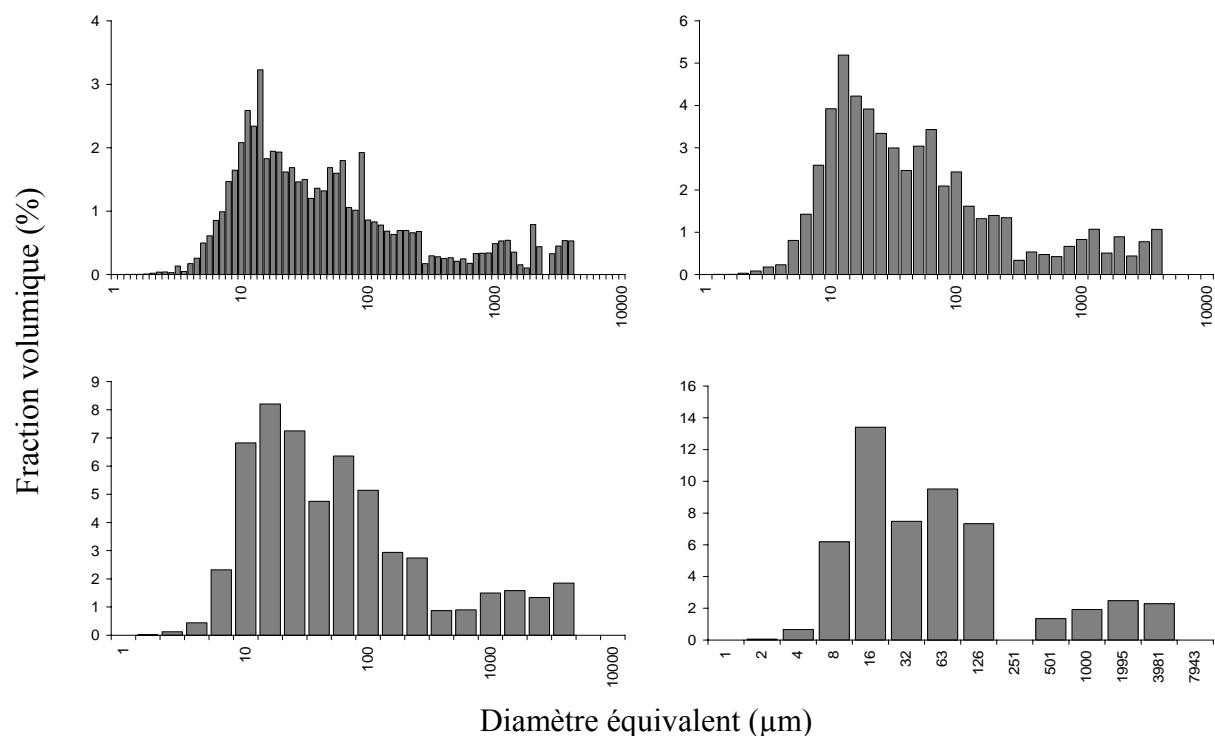


Figure 58. Influence du nombre de classes de tailles choisies sur la forme de la distribution de tailles de vésicules.

III.4. Nucléation, croissance et coalescence des vésicules durant les explosions volcaniennes de la Soufrière Hills à Montserrat

III.4.1 Résumé

En 1997, la Soufrière Hills a connu deux périodes d'activité volcanienne impliquant en tout 88 explosions. Chacune de ces explosions a vidé la partie supérieure du conduit sur 0,5 à 2 km, deux tiers du volume étant émis sous forme de coulées pyroclastiques et le reste sous forme de retombées. Les ponces émises provenaient d'une zone profonde et riche en gaz, les blocs denses et les bombes en croûte de pain avaient pour origine le bouchon dégazé, tandis que les ponces denses dérivait d'une zone transitionnelle.

La vésicularité varie de 1 à 66 %vol dans les bombes en croûte de pain et de 24 à 79 % dans les ponces, toutes les vésicules supérieures à quelques dizaines de microns étant interconnectées. Dans tous les échantillons, les plus petites vésicules, inférieures à quelques dizaines de microns, sont interprétées comme étant syn-explosives, comme le suggère leur présence dans les intérieurs de bombes en croûte de pain qui proviennent d'un magma initialement dense. Selon notre interprétation, la plupart des grandes vésicules (> plusieurs centaines de μm) dans les ponces sont pré-explosives, impliquant des porosités pré-explosives dans le conduit pouvant atteindre 55%. Environ 15% des grandes vésicules dans les ponces et toutes celles présentes dans les bombes en croûte de pain sont des pores angulaires créés par des fractures syn-explosives de phénocristaux d'amphiboles. Une population de vésicules de tailles intermédiaires, formées par la coalescence des petites vésicules, est visible dans les ponces. La nucléation des petites vésicules s'est produite de façon hétérogène sur des microlites de titanomagnétite dont la densité numérique est largement supérieure à celle des vésicules. Les bulles formées ont ensuite grandi principalement par décompression.

Le développement des textures des vésicules a été contrôlé par l'intervalle de temps entre la décompression et le début du refroidissement de la surface du claste. Les fragments du bouchon dégazé sont entrés en contact avec l'air juste après leur fragmentation (~10 s), permettant à leur intérieur de continuer à vésiculer alors que leur extérieur était déjà trempé. Pour les ponces qui proviennent de plus profond, l'intervalle de temps plus grand (~50 s) a permis à la vésiculation d'être complète avant la trempe, expliquant la similarité de texture entre les ponces de coulées pyroclastiques et les ponces de retombées, malgré des histoires thermiques différentes après la sortie de l'évent. Cela a permis aussi à la coalescence d'être plus développée dans les ponces que dans les bombes en croûte de pain. Un boudinage uniaxial de certaines amphiboles implique une vésiculation syn-explosive importante dans les

ponces, avant même la fragmentation du magma. Les taux de décompression syn-explosifs estimés à partir des densités numériques de vésicules ($>0,3-6,5 \text{ MPa s}^{-1}$) sont cohérents avec ceux prédits par les modélisations numériques.

Bubble nucleation, growth and coalescence during the 1997 Vulcanian explosions of Soufrière Hills Volcano, Montserrat

Giachetti T^{1,2,3}, Druitt TH^{1,2,3}, Burgisser A⁴, Arbaret L⁴, Galven C⁵.

¹ Clermont Université, Université Blaise Pascal, Laboratoire Magmas et Volcans, BP 10448, F-63000 CLERMONT-FERRAND

² CNRS, UMR 6524, LMV, F-63038 CLERMONT-FERRAND

³ IRD, R 163, LMV, F-63038 CLERMONT-FERRAND

⁴ Institut des Sciences de la Terre d'Orléans
Université d'Orléans,
1A, rue de la Férollerie
45071 Orléans Cedex 2 (France)

⁵ Laboratoire des Oxydes et Fluorures
Faculté des Sciences et Techniques, Université du Maine
Avenue Olivier Messiaen
72085 Le Mans Cedex 9 (France)

Soumis à Journal of Volcanology and Geothermal Research (juillet 2009)

Accepté avec revues mineures (janvier 2010)

Sous presse au moment de l'impression de ce manuscrit (février 2010)

III.4.2 Abstract

Soufrière Hills Volcano had two periods of repetitive Vulcanian activity in 1997. Each explosion discharged the contents of the upper 0.5-2 km of the conduit as pyroclastic flows and fallout: frothy pumices from a deep, gas-rich zone, lava and breadcrust bombs from a degassed lava plug, and dense pumices from a transition zone. Vesicles constitute 1-66 vol% of breadcrust bombs and 24-79% of pumices, all those larger than a few tens of μm being interconnected. Small vesicles ($< \text{few tens of } \mu\text{m}$) in all pyroclasts are interpreted as having formed syn-explosively, as shown by their presence in breadcrust bombs formed from originally non-vesicular magma. Most large vesicles ($> \text{few hundreds of } \mu\text{m}$) in pumices are interpreted as pre-dating explosion, implying pre-explosive conduit porosities up to 55%. About 15% of large vesicles in pumices, and all those in breadcrust bombs, are angular voids formed by syn-explosive fracturing of amphibole phenocrysts. An intermediate-sized vesicle population formed by coalescence of the small syn-explosive bubbles. Nucleation took place heterogeneously on titanomagnetite, number densities of which greatly exceed those of vesicles, and bubble growth took place mainly by decompression.

Development of vesicle textures was controlled by the time interval between decompression and onset of clast-surface cooling. Plug fragments entered the air quickly after fragmentation (~ 10 s), so interiors continued to vesiculate once the rinds had quenched. A larger time interval for deep-derived pumices (~ 50 s) allowed complete vesiculation prior to quench, accounting for the textural similarity between flow and fall pumices, despite different thermal histories after leaving the vent. This also allowed syn-explosive coalescence to proceed further in pumices than in the breadcrust bombs. Uniaxial boudinage of some amphiboles implies significant syn-explosive vesiculation of pumices even prior to magma fragmentation. Syn-explosive decompression rates estimated from vesicle number densities ($> 0.3\text{-}6.5 \text{ MPa.s}^{-1}$), and are consistent with those predicted by numerical models.

Keywords : Vulcanian explosions; Soufrière Hills; Vesiculation; Bubble nucleation; Bubble growth; Coalescence

III.4.3 Introduction

Explosive volcanic eruptions are driven by the nucleation, growth and coalescence of gas bubbles, followed by fragmentation of the magmatic foam into a suspension of pyroclasts and gas that is discharged at high velocities into the atmosphere. Studies of pyroclast textures, coupled with experimental and numerical approaches, have advanced understanding of these processes (Lensky et al. 2004; Spieler et al. 2004b; Adams et al. 2006; Toramaru 2006; Gardner 2007; Cluzel et al. 2008; Koyaguchi et al. 2008 and references therein), but many questions remain. One concerns the relative importance of homogeneous versus heterogeneous nucleation. Homogeneous nucleation requires gas supersaturations of at least several tens of MPa (Mangan and Sisson 2000; Mourtada-Bonnefoi and Laporte 2002; 2004; Mangan et al. 2004), whereas heterogeneous nucleation requires lower supersaturations (Hurwitz and Navon 1994; Gardner 2007; Cluzel et al. 2008). The degree of equilibrium between gas and melt during bubble growth also has an effect. Equilibrium degassing requires efficient volatile diffusion coupled with melt viscosity low enough to allow free gas expansion (Lyakhovsky et al. 1996; Liu and Zhang 2000; Lensky et al. 2004). Low degrees of equilibrium favour short-lived eruptions, whereas equilibrium allows more sustained fragmentation (Melnik and Sparks 2002; Mason et al. 2006). Another issue concerns the timing of bubble growth and coalescence relative to fragmentation and eruption. Some authors postulate little growth following fragmentation (Klug and Cashman, 1991) whereas others envisage significant post-fragmentation growth (Thomas et al. 1994; Kaminski and Jaupart 1997). Post-fragmentation bubble growth is controlled by melt viscosity, being important in mafic melts and less so in silicic melts with viscosities $>10^8$ - 10^9 Pa.s (Thomas et al. 1994; Gardner et al. 1996; Kaminski and Jaupart 1997). Bubble coalescence controls permeability acquisition and the ability of magma to outgas during ascent.

Vesicle size distributions provide information on magma vesiculation history. Pumices commonly contain multiple vesicle populations covering a large range of sizes (Klug and Cashman 1996; Klug et al. 2002; Adams et al. 2006) that may result from coalescence following a single nucleation event (Orsi et al 1992; Klug and Cashman 1994, 1996; Klug et al. 2002; Burgisser and Gardner 2005). Alternatively, each population may represent a distinct nucleation event, multiple events being predicted by some ascent models for viscous magma (Whitham and Sparks 1986; Proussevitch and Sahagian 1996; Blower et al. 2001; Massol and Koyaguchi 2005). Small vesicles are commonly attributed to syn-explosive vesiculation that generates an exponential size distribution (Mangan et al. 1993; Klug and

Cashman 1996; Klug et al. 2002; Adams et al. 2006). Size distributions of larger populations typically obey power laws usually attributed to coalescence (Klug et al. 2002; Houghton et al. 2003; Gurioli et al. 2005; Adams et al. 2006; Klug and Cashman 1996), although multiple nucleation events also generate power-law distributions (Blower et al. 2001). Magma decompression rates can be estimated from vesicle number densities (Toramaru 2006; Cluzel et al. 2008).

Detailed studies of eruptive products are required to address these questions and provide ground truth for models. Most vesiculation studies to date have concerned Plinian eruptions. In this paper we study vesiculation during a sequence of well documented Vulcanian explosions at Soufrière Hills Volcano in 1997. The explosions have been previously described (Druitt et al. 2002; Cole et al. 2002) and modelled (Melnik and Sparks 2002; Clarke et al. 2002; Formenti et al. 2003; Diller et al. 2006; Mason et al. 2006), and their products studied texturally (Formenti and Druitt 2003; Clarke et al. 2007) and chemically (Harford et al. 2003). A key feature was the eruption of pyroclasts of a wide range of types, including dense lava fragments, breadcrust bombs and pumices of different densities. Textural analysis, including a set of high-resolution vesicle-size distributions, enables us to recognize populations of vesicles formed by explosion decompression, quantify bubble nucleation mechanisms and decompression rates, and constrain the timing of bubble nucleation, growth and coalescence during, and immediately following, a typical explosion. In a companion paper we present measurements of groundmass water contents and reconstruct the state of the pre-explosion conduit (Burgisser et al. in prep).

III.4.4 The 1997 Vulcanian explosions of the Soufrière Hills Volcano

The eruption of Soufrière Hills Volcano (Figure 59) began phreatically in July 1995; extrusion of lava began in November of the same year and continued intermittently until the time of writing. The explosions in 1997 occurred every 3-63 hrs (mean of ~10 hrs) in two periods: thirteen between 4 and 12 August, and seventy five between 22 September and 21 October (Druitt et al. 2002). Each consisted of an initial high-intensity phase lasting a few tens of seconds, followed by a waning phase lasting 1-3 hours. Multiple jets were ejected at $40\text{-}140\text{ m.s}^{-1}$ during the first 10-20 s of each explosion, then collapsed back to form pumiceous pyroclastic flows that travelled up to 6 km from the crater (Formenti et al. 2003). Fallout of pumice and ash occurred from high (3-15 km) buoyant plumes that developed above the collapsing fountains. Fallout and flow took place at the same time from individual explosions. Each explosion discharged on average 8×10^8 kg of magma, about two-thirds as

pyroclastic flows and one-third as fallout, representing a conduit drawdown of 0.5-2 km (Druitt et al. 2002). Studies of quench pressures using microlite contents and glass water contents support a maximum drawdown of ~2 km (Clarke et al. 2007; Burgisser et al. in prep). Each explosion started when magma overpressure exceeded the strength of an overlying degassed plug and a fragmentation wave propagated down the conduit at a few tens of m.s^{-1} (Druitt et al. 2002; Clarke et al. 2002; Melnik and Sparks 2002; Spieler et al. 2004a; Diller et al. 2006; Mason et al. 2006). After each explosion, magma rose up the conduit before the onset of a new explosion.

The Soufrière Hills andesite contains phenocrysts of plagioclase, hornblende, orthopyroxene, magnetite, ilmenite and quartz set in rhyolitic glass. The pre-eruptive temperature was ~850°C (Devine et al. 2003).

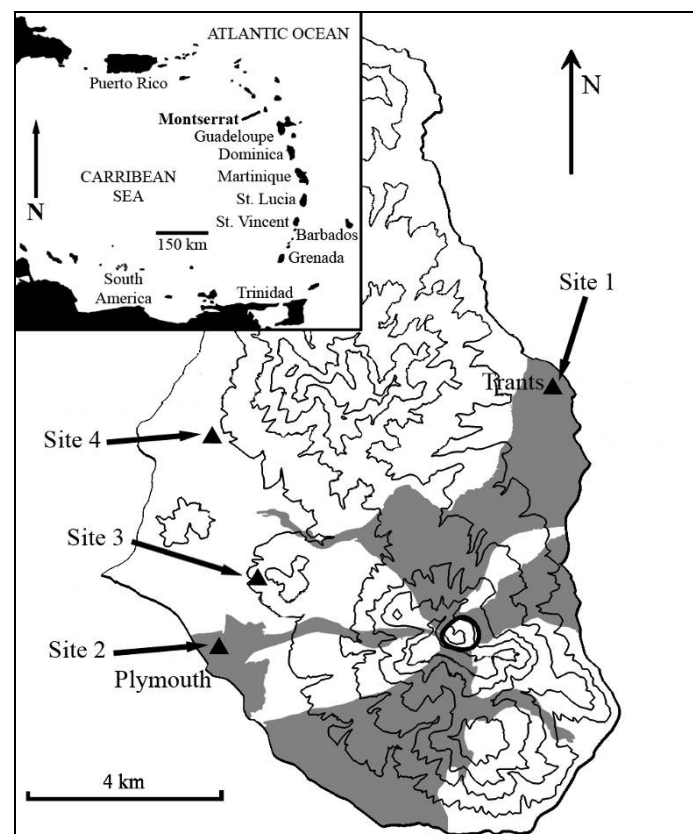


Figure 59. Map of Montserrat showing Soufrière Hills Volcano and sampling locations. Grey: pyroclastic flow deposits of the 1997 Vulcanian explosions.

III.4.5 Field descriptions

III.4.5.a *Methods*

Field work was carried out in 2006 and 2008 at three sites (Figure 59): sites 1 and 2 are situated on the fans of overlapping pyroclastic flow lobes from the explosions, and site 3 is a composite layer of fallout pumice from many explosions. Fallout pumices were also

collected at a fourth site (site 4; Figure 59) during one event in August 1997. Field descriptions were made using a rock saw to cut perpendicular to any flow banding and parallel to any crystal fabric, and over 100 representative pyroclasts were taken for laboratory study.

III.4.5.b Results

The pyroclast assemblage consists predominantly of pumices of different colours, vesicularities and textures, with less than a few % of breadcrust bombs and dense glassy lava clasts. Pyroclasts of all types were present in the pyroclastic flow deposits, although the relative proportions varied from lobe to lobe, while dense lava and breadcrust bombs were absent in the fallout. The samples described below did not come from a single explosion, and cannot be assigned to specific events owing to the complex superposition of flow and fallout lobes from the many explosions. They represent the products of an ‘average’ explosion, as justified by (1) the first-order similarity of all the explosions (Druitt et al. 2002), and (2) the presence of the entire pyroclast spectrum in all pyroclastic flow lobes we examined.

Pumices in the pyroclastic-flow deposits occur as lapilli and blocks up to >1 m in diameter with subangular-to-rounded shapes due to abrasion during transport. They range from beige, well vesiculated varieties, to grey, brown or black denser varieties (Figure 60a-b). A pink colouration affects the surfaces of many blocks, but rarely pervades the interiors. While the majority of pumices are texturally homogeneous, some denser ones are flow banded with phenocryst alignment within the plane of banding. Rare compositional banding defined by trails of disintegrated mafic inclusions also occurs. All pumice clasts (as distinguished from breadcrust bombs) lack surface breadcrusting. This cannot be explained by abrasion because breadcrust fragments are not observed in the flow matrices. All pumices smaller than ~30 cm lack radial gradients in vesicle abundance or size. However, some blocks larger than this exhibit visibly obvious radial gradients in vesicle size, with an outer 3-7-cm-thick rind with vesicles up to several mm, and a more coarsely vesicular interior containing vesicles up to an order of magnitude larger (Figure 60c). In some cases a crude cm-scale radial jointing affects the rind. The rind is inferred to represent the initial textural state of the pumice, while the interior records vesicle coarsening that took place after emplacement. The possibility that the interior represents the initial state, and that the rind developed by compaction during rolling in the pyroclastic flow, is not favoured because (1) the rinds texturally resemble the majority of smaller pumice blocks and lapilli, whereas vesicles in the interiors are abnormally coarse, and (2) no circumferential flattening of rind vesicles is

observed. Many blocks also contain large voids up to several cm across, including anastomosing vesicle pipes and channels, ductile tears in the plane of flow banding, and curvilinear tears and cracks subparallel to clast margins (Figure 60d), which together account for <10% of the total vesicularity.

Fallout pumices are up to several cm in size and most preserve their original eruption-fragmentation shapes, unmodified by abrasion in pyroclastic flows or breakage on ground impact. They range in colour from white to brown and in shape from spheroidal to tabular, the latter comprising about three-quarters of the sample suite. Again, no surface breadcrusting is observed.

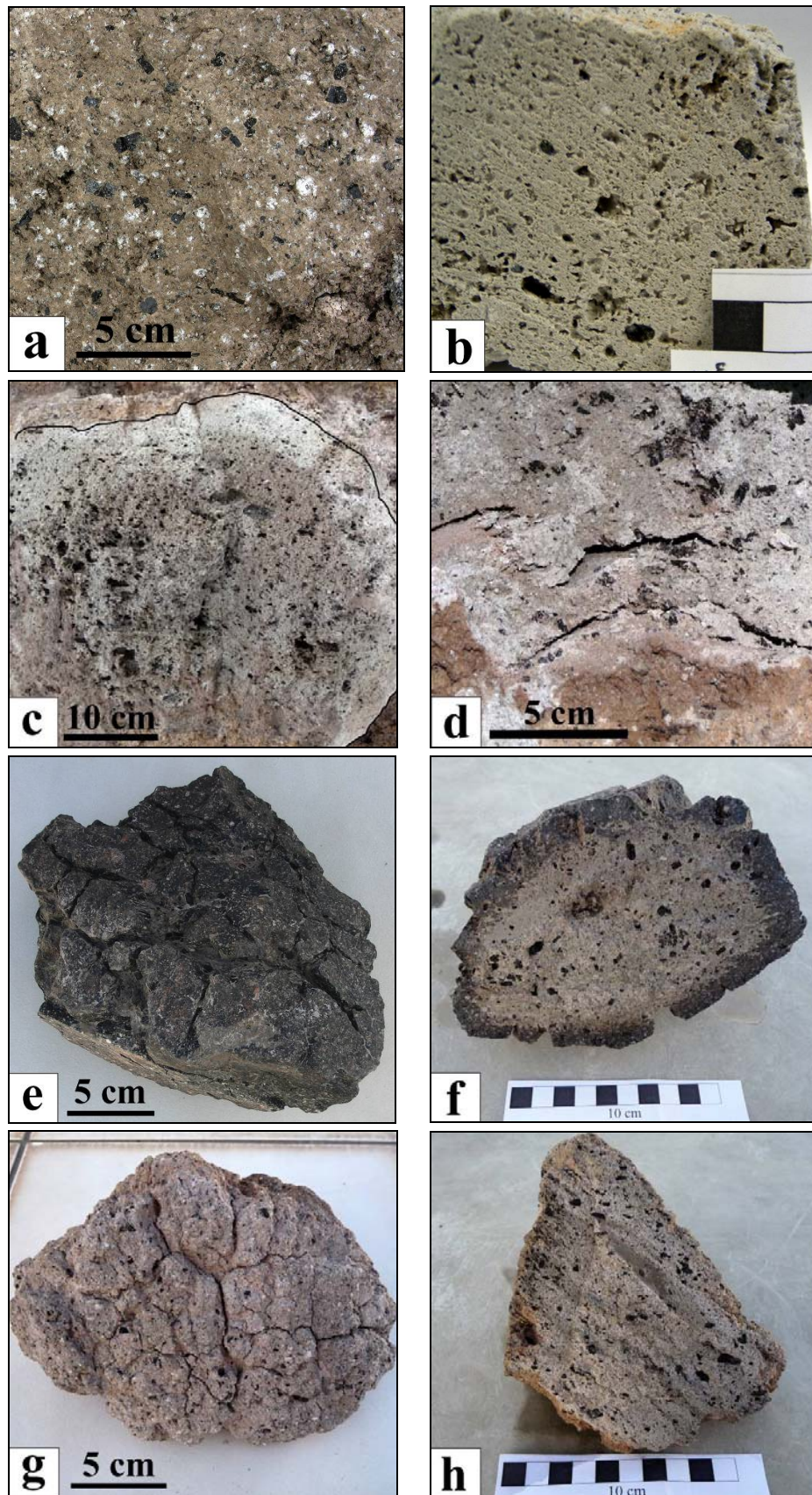


Figure 60. Pumices and breadcrust bombs from the explosions. a) Dark brown pumice with 60% vesicularity, b) Pale pumice with 76% vesicularity, c) Large grey pumice exhibiting a radial gradient in vesicularity, d) Curvilinear tears and cracks subparallel to clast margins in a dense

pumice, e-f) Exterior and cross section of a coarsely breadcrust-bomb, g-h) Exterior and cross section of a finely breadcrusted bomb.

Breadcrust bombs occur from a few cm to over a metre in diameter. They have vesicular interiors surrounded by darker, less vesicular <10 mm glassy rinds. A continuous range of textural varieties are observed between two endmembers. Coarsely breadcrusted bombs are relatively dense, with well defined, dark-grey-to-black, poorly-to-non-vesicular rinds, broad, deep surface fractures defining large polygons, and grey-to-brown vesicular interiors (Figure 60e-f). Finely breadcrusted bombs are less dense, with diffuse, pale vesicular rinds, finer polygonal networks of narrower, shallower surface fractures, and paler, commonly flow-banded interiors (Figure 60g-h). Some bombs that broke during eruption exhibit two generations of breadcrusting, the breakage surface being more finely breadcrusted than the original, outer surface of the bomb. Breakage is inferred to have exposed the already vesicular interior, which then developed a second generation of finer breadcrusting. The bombs were abraded during transport in the pyroclastic flows; most lack completely preserved breadcrust surfaces with sharp edges and corners, and partial rind removal, rounding of polygon edges, and abrasion of vesicular interiors are common.

Clasts of black, essentially nonvesicular lava resembling the glassy rinds of the coarsely breadcrust bombs are interpreted as an integral component of the explosion-pyroclast suite. On the other hand, grey-to-brown holocrystalline lava and cinderblock clasts resembling typical dome rock were probably derived either from the crater walls or by erosion of earlier block-and-ash flow deposits.

III.4.6 Pyroclast vesicularities

III.4.6.a Methods

Abundances of isolated and connected vesicles were measured on 2-5 cm cubes cut from 30 breadcrust bombs and 34 flow and fall pumices using a Multivolume 1305 Helium Pycnometer and the method of Formenti and Druitt (2003). Separate measurements were made on the rims and cores of 22 breadcrust bombs. Twenty-six of the pumice clasts were visually homogeneous and ranged from lapilli to block size, all being <20 cm in diameter. Multiple measurements were made on another eight pumices >30 cm in diameter, four of which appeared homogeneous in the field, and four of which had visually obvious radial gradients in vesicle size. Texturally or compositionally banded pumices were not included. The data are tabulated as supplementary electronic material.

III.4.6.b Results

Vesicularities of pumice lapilli and blocks range from 24 to 79 vol% (Figure 61) and correlate with colour, being lowest in darker pumices and higher in paler ones. The fraction of isolated vesicles (isolated divided by total vesicularity) is universally low (<0.25 , with 85% <0.1). Flow pumices cover the entire vesicularity range and have isolated fractions of 0-0.13, whereas fallout pumices have vesicularities of 43-72 vol% and isolated fractions of 0.04-0.14, a single sample having 0.25 (Figure 61). No variation of either vesicularity or isolated vesicle fraction with clast size is observed.

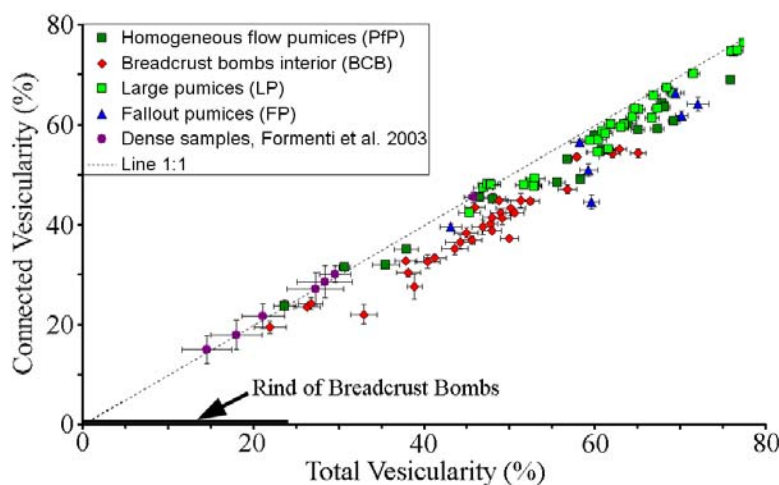


Figure 61. Plot of connected versus total vesicularity for all the samples of this study. Lava samples from dome collapses at Soufrière Hills Volcano are also shown (Formenti and Druitt 2003). As connected vesicularities could not be determined for breadcrust bombs rinds, we just show the range of bulk vesicularities obtained (thick black line).

Vesicularity profiles across the eight >30 cm pumice blocks are shown in Figure 62. The four visually homogeneous blocks lack significant gradients in vesicularity from core to rim, as anticipated from inspection. The four vesicle-size-graded blocks, on the other hand, exhibit vesicularity gradients, but these vary from sample to sample and no systematic decrease in vesicularity from core to rim is evident. The coarse interiors of these pumices are no more vesicular than the more finely vesicular rims. Textural coarsening in the interiors therefore took place without inflation, as consistent with the absence of surface breadcrusting.

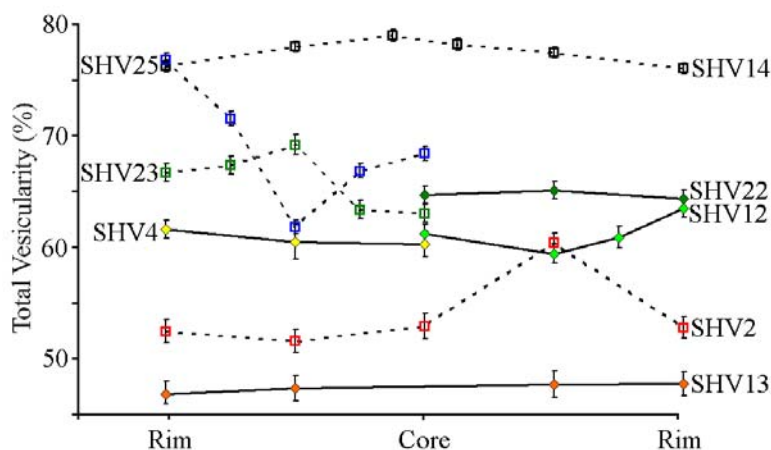


Figure 62. Vesicularity as a function of relative position inside large pumices (>30 cm). Filled diamonds with solid lines are those pumices that were judged in the field to be texturally homogeneous; squares with dashed lines are those that had larger vesicles in the interior than in the rind.

Vesicularities of breadcrust-bomb interiors range from 20 to 66 vol%, most lying between 35 and 55% (Figure 61), with isolated fractions of 0.05-0.33 (>80% being 0.1-0.2). They differ from pumices in (1) having a vesicularity range slightly shifted to lower values, highly vesicular (>66 vol%) samples not being observed, and (2) having slightly higher fractions of isolated pores than pumices of similar vesicularity. Bomb rinds contain 1-25 vol% vesicles, most of which are isolated. Rind and interior vesicularities are broadly correlated (Figure 63). Coarsely breadcrusted bombs have the lowest vesicularities, both in rinds and interiors, and finely breadcrusted bombs are more vesicular. It is the existence of vesicular rinds on finely breadcrusted bombs that gives these bombs their pale colours and make distinction between rind and interior less clear than in the coarsely breadcrusted bombs.

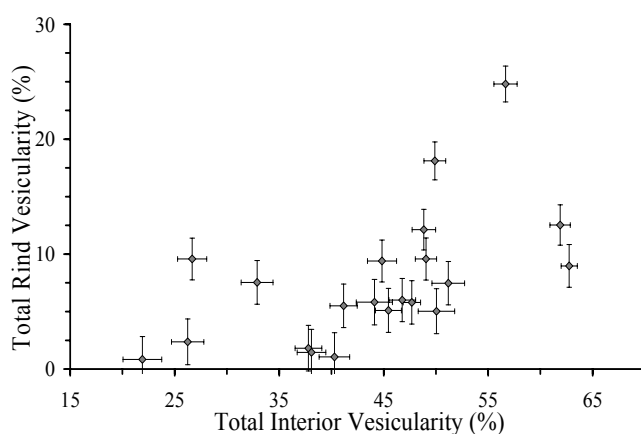


Figure 63. Relationships between rind and interior vesicularities of breadcrust bombs, including both coarsely and finely breadcrusted types.

III.4.7 Microscopic vesicle textures

III.4.7.a *Methods*

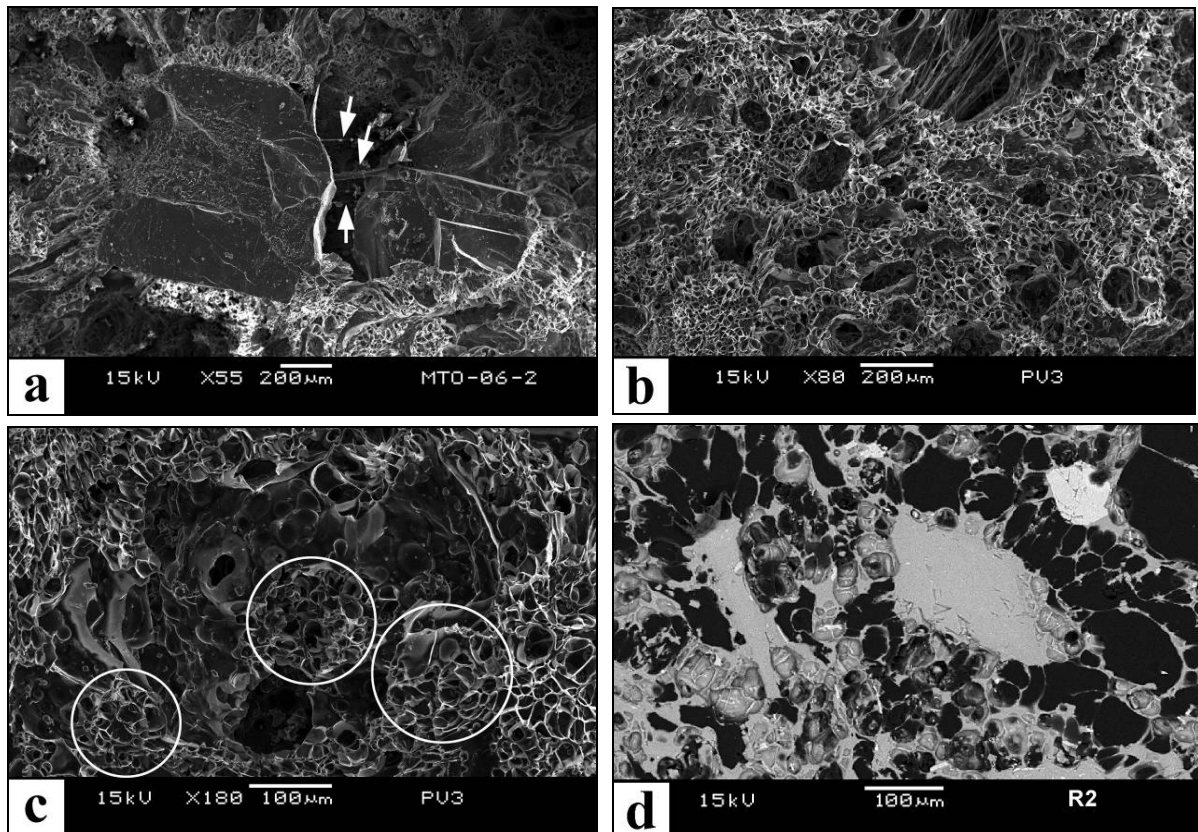
Microscopic observations were made on broken surfaces using a Jeol JSM-591LV Scanning Electron Microscope (SEM) at an acceleration of 15 kV, and on polished epoxy-impregnated thin sections using the SEM and a stereomicroscope.

III.4.7.b *Results*

The pyroclasts contain vesicles of a broad range of sizes set in microlite-bearing groundmass. In this section we focus on vesicles less than a few mm in diameter present in handspecimens, and distinguish three populations: small (less than a few tens of μm), intermediate (few tens to a few hundreds of μm) and large (few hundreds of μm to a few mm), which also have genetic significance.

Vesicle textures in fallout and flow pumices are very similar and are described together. The large vesicles form interconnected networks with curved, scalloped walls indicative of coalescence. Those in more vesicular pumices are quasi-spherical to elliptical in

shape, whereas those in dense pumices commonly have more ragged, fissure-like shapes, and form more evident channelways. This gives the impression that large vesicle channels and sheets in dense pumices already existed and were actively collapsing immediately prior to eruption. About 15% of the large vesicles are angular voids associated with fractured amphibole phenocrysts (Figure 64a). Intermediate-sized vesicles in all pumices have variably rounded to ragged shapes and, like the large ones, form interconnected networks in three dimensions. In contrast, small vesicles are commonly spherical and many are isolated; they either form a ‘matrix’ in which the intermediate vesicles are dispersed (Figure 64b), or are situated in the walls separating the latter. In some samples the smallest isolated vesicles form sub-spherical clusters several tens of microns in diameter that protrude with bulbous, cauliform shapes into larger vesicles (Figure 64c; Formenti and Druitt 2003). There is clear textural evidence that many vesicles of intermediate size formed by coalescence of the small vesicles (rather than pre-existing them), the process commonly being preserved quenched in progress (Figure 64e). The sizes of some intermediate vesicles appear to be inherited from the clusters of small vesicles when the latter coalesced while preserving the overall sub-spherical form of the cluster.



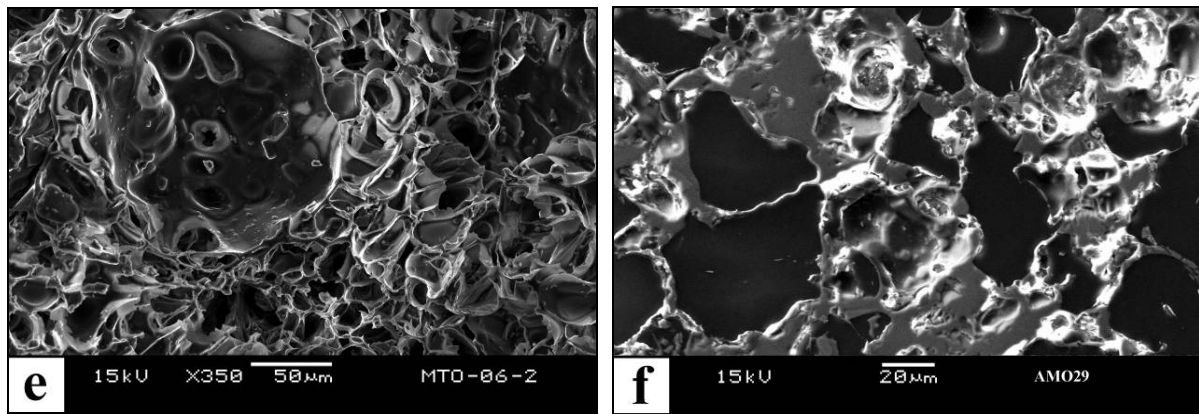


Figure 64. SEM images of broken surfaces (a,b,c,e) and thin sections (d,f) of pumices. a) Angular void in a fractured amphibole phenocryst, the fragments being connected by thin glass fibres (white arrows), b) Visual evidence for three different size populations (large, intermediate and small) of vesicles in pumices, c) Cauliform-shaped clusters of small vesicles protruding into intermediate ones, d) Microphenocryst of plagioclase surrounded by radiating, elongated vesicles, e) Evidence for coalescence of small vesicles to form intermediate-sized ones, f) Wrinkling of vesicle wall indicative of the onset of rupture.

Vesicles in pumices are commonly observed in spatial association with phenocrysts. Large, angular voids are associated with fractured amphiboles, and have two endmember types: (1) voids in amphiboles boudinaged uniaxially in the plane of flow foliation, with well defined length-perpendicular fractures (Figure 65); (2) voids in amphiboles that are fractured both perpendicular and parallel to length, and the fragments dispersed around the vesicle margins in a manner suggestive of more isotropic expansion. In both types, crystal fragments are commonly connected by thin, delicate threads of glass generated either by the bursting of melt inclusions, or by the pulling-out of thin, pre-existing melt films in incipient cracks. A single type of amphibole-associated void is commonly dominant within a given pumice block. Type 1 is observed in ~45% of pumices and type 2 in ~35%, the remaining ~20% of pumices lacking voids associated with amphibole. Another common texture involves radial arrangements of stretched vesicles around phenocrysts (Figure 64d). This is attributed to expansion of a magmatic foam around a rigid crystal; it cannot be due to heterogeneous nucleation because the vesicles are separated from all plagioclase and amphibole by a thin glass film, showing that the crystals were not wetted by gas. Only in the case of titanomagnetite is it common to see vesicles in direct contact with crystals without intervening glass, suggesting that titanomagnetite provided nucleation sites for bubbles (Figure 66).

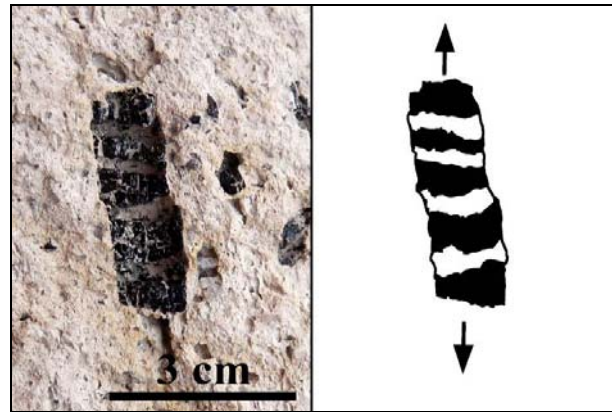


Figure 65. Uniaxially boudinaged amphibole phenocryst in pumice indicative of significant syn-explosive vesiculation prior to magma fragmentation.

There is abundant evidence that bubble coalescence was ongoing at all scales larger than a few μm at the time of sample quench: ovoid, neck-like connections with partially retracted walls between neighbouring vesicles (Figure 64e), wrinkling of thin vesicle walls (Figure 64f), the occurrence of thin glass fibres, and the interconnection of all but a fraction of the smallest vesicles. Minimum observed vesicle wall thicknesses are $<1 \mu\text{m}$.

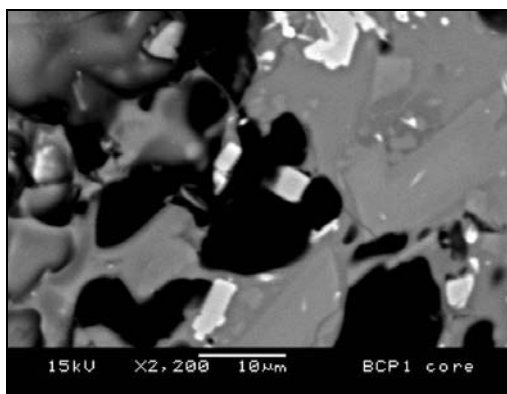


Figure 66. Textural evidence for heterogeneous nucleation on titanomagnetite. The crystal appears to lack a glass rind, indicating that the gas wetted the solid. This is not the case for amphibole (Figure 64a) or plagioclase (Figure 64d), which always have thin glass films separating crystal from vesicle.

Breadcrust bomb rinds contain small, mostly isolated, vesicles that are irregularly distributed, being most abundant near rind-penetrating surface fractures and around phenocrysts (Figure 67a, c). Areas of vesicle-free groundmass occur in the rinds of coarsely breadcrusted bombs, but not in those of the finely breadcrusted bombs. The lower limit of the rind is commonly marked by string-like networks of small vesicles, which then merge to form the more uniformly distributed vesicle population of the interior. The interiors of all bombs contain distinct large and small vesicle populations. Large vesicles are invariably associated with fractured amphiboles, like those in the pumices. However, well developed uniaxial boudinage is never observed in breadcrust bombs, and the voids are typically of the more isotropic type 2. Small vesicles are uniformly distributed throughout the bomb interiors (Figure 67b, d); they are mostly isolated, with quasi-spherical forms, and commonly occur in

strings and clusters around crystals and large vesicles. Evidence for vesicle coalescence is abundant in bomb interiors, although less so than in pumices.

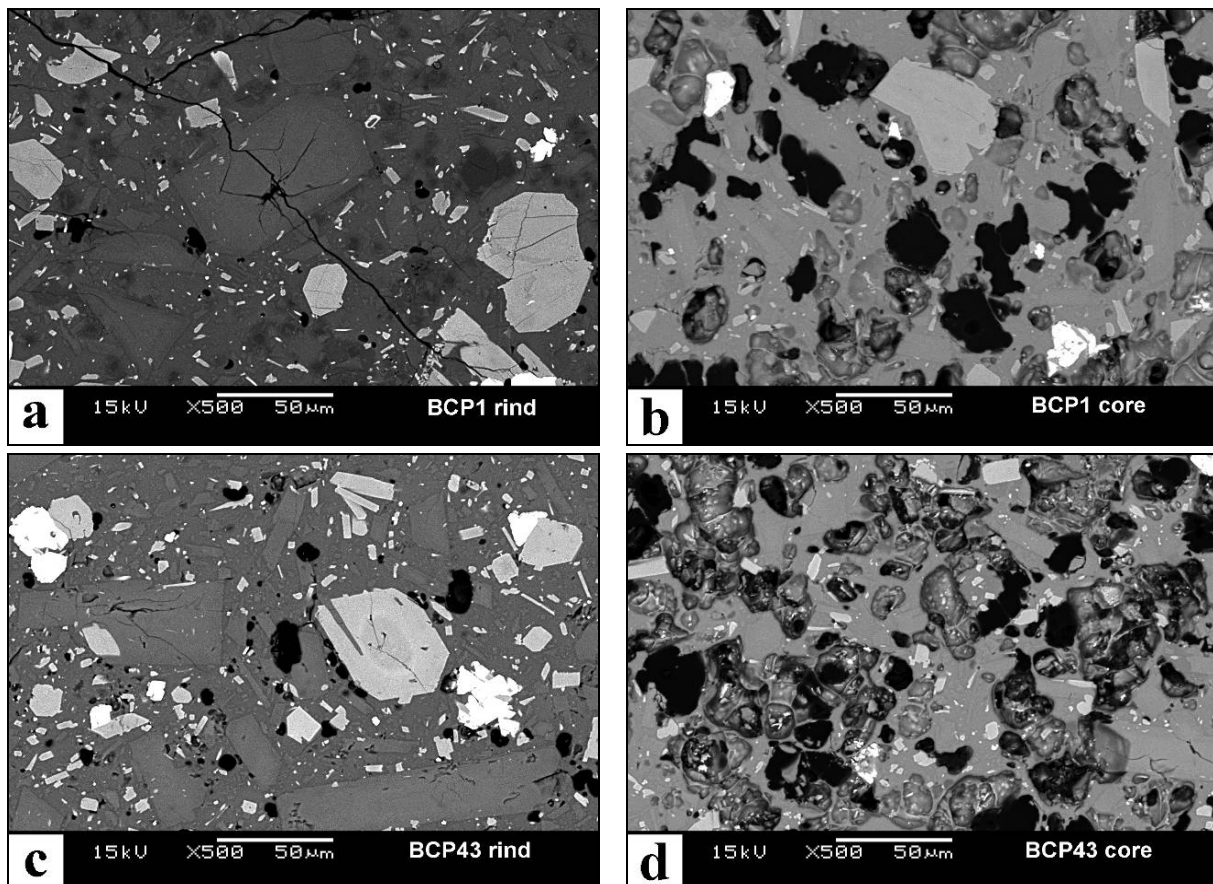


Figure 67. Backscattered SEM images of breadcrust bombs. All the images are at the same scale. a) Coarsely breadcrusted bomb rind containing rare small isolated vesicles. Note that the bomb rinds are typically very heterogeneous, and vesicles are not present everywhere. The occurrence of areas of rind free of vesicles shows that the coarsely breadcrusted bombs inflated from essentially non-vesicular magma. b) Vesicular interior of coarsely breadcrusted bomb core containing both isolated (non-impregnated: grey) and connected (impregnated: black) vesicles, c) Finely breadcrusted bomb rind with patchily distributed small vesicles; note the higher vesicle numbers than in the rind of the coarsely breadcrusted bomb (a). d) Finely breadcrusted bomb core containing the same two types of vesicles as the coarsely breadcrusted bomb (b), but in greater abundance.

III.4.8 Size distributions of vesicles and crystals

III.4.8.a Methods

Six samples representative (in terms of vesicularity and texture) of the pyroclast assemblage were chosen for high-resolution analysis of vesicle-size distribution: a coarsely breadcrusted bomb (BCP1), a finely breadcrusted bomb (BCP43), three pyroclastic-flow pumices (AMO29, AMO36 and PV3), and a fallout pumice (R2). Banded clasts, and those with a significant fraction of non-spherical vesicles, were excluded, thereby justifying use of a single, randomly oriented thin section for each sample. Separate measurements were made on

the rinds and interiors of the two breadcrust bombs. Groundmass water contents of five of the samples were analysed by Burgisser et al. (in prep).

Vesicle and crystal size distributions were measured by image analysis in two dimensions (Toramaru 1990; Mangan et al. 1993; Klug and Cashman 1994, 1996; Klug et al. 2002; Adams et al. 2006, Shea et al. submitted). The technique, described fully in the Appendix, allowed objects as small as $\sim 1\ \mu\text{m}$ to be measured. Differential impregnation enabled us to distinguish interconnected from isolated vesicles. To represent the state of the magma immediately prior to the last discernible stage of coalescence, we manually ‘decoalesced’ neighbouring vesicles separated by a partially retracted wall. Volume distributions were assumed to equal area distributions (Klug et al. 2002) and volumetric number densities (N_v) were calculated from area number densities (N_a) using both the methods of Cheng and Lemlich (1983) and of Sahagian and Proussevitch (1998), which yield very similar values (Table 7). Values of N_v presented below are those obtained using the first method, for reasons given in the Appendix. Total vesicularities calculated by image analysis are within 4 vol% of pycnometry measurements on the same clasts (Table 7).

III.4.8.b Results

Glass-referenced vesicle-volume distributions are shown in Figure 68, with connected and isolated vesicles distinguished. The ranges over which textural evidence for coalescence was observed are also indicated, as are the limits between different image magnifications. No major artefacts related to changes in magnification are apparent; some small discontinuities in the distributions of AMO29 and PV3 may be artefacts, but no conclusions are based on these.

Distributions of the breadcrust bombs are markedly bimodal. The large population is accounted for entirely by amphibole-associated voids. The small vesicles form a narrow, well defined peak; those in the rinds are entirely isolated and form a mode at $<10\ \mu\text{m}$, whereas in the bomb interiors a significant fraction are interconnected and the size mode is larger ($\sim 20\ \mu\text{m}$). The interior of the finely breadcrusted bomb contains a minor population of intermediate-sized vesicles. The distributions of all four pumices are also roughly bimodal, with a size gap at $\sim 200\text{--}500\ \mu\text{m}$. The finer mode is, however, much broader than in the breadcrust bombs, consisting of comparable proportions of small and intermediate-sized vesicles. The small population resembles that in the breadcrust bombs and contains all the isolated vesicles present. The intermediate population forms a coarse-tail shoulder on the small population. In pumices PV3 and R2, the small and intermediate populations form distinct sub-peaks at $10\text{--}20$ and $65\text{--}80\ \mu\text{m}$, respectively.

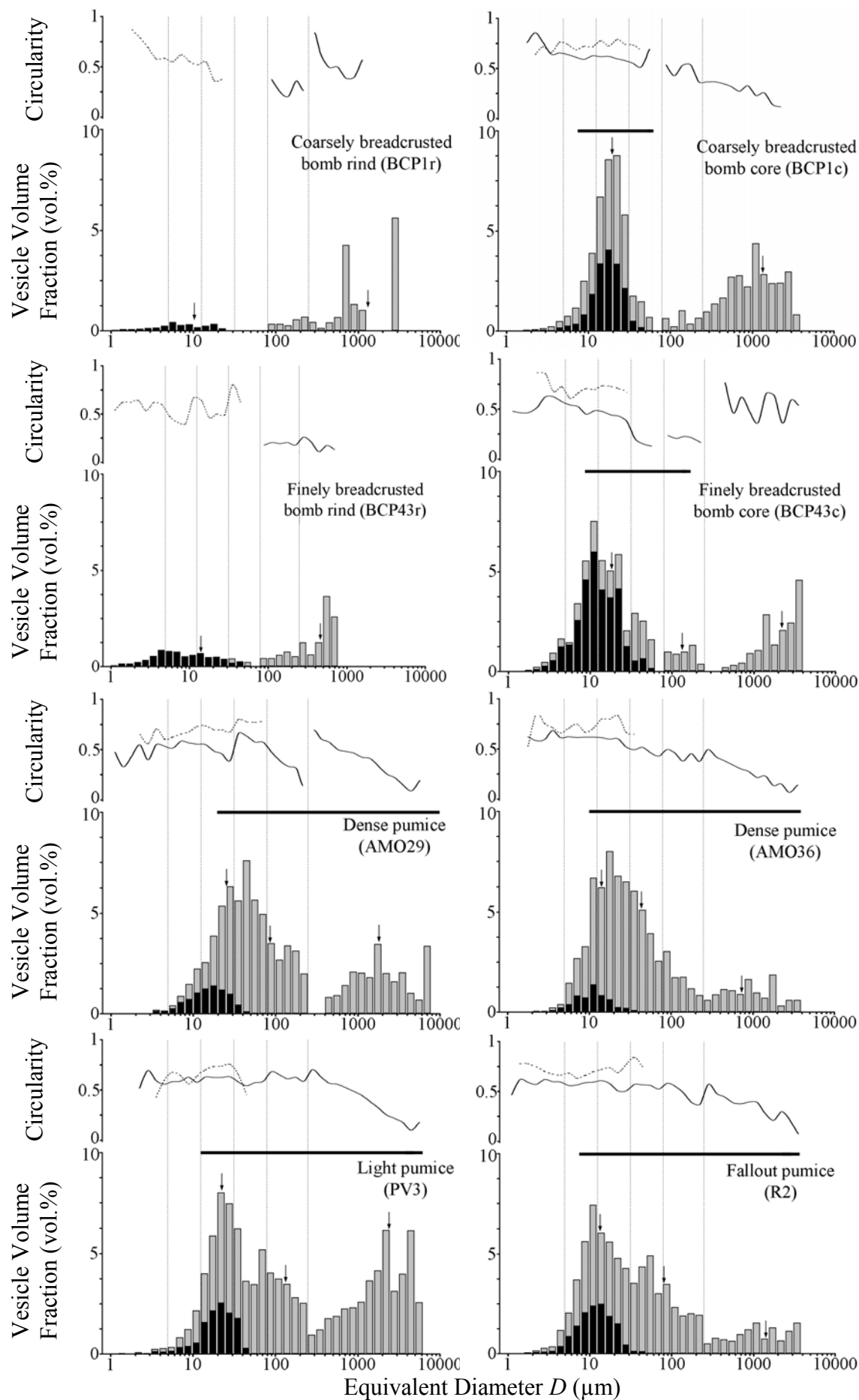


Figure 68. Glass-referenced (i.e., crystal-free) vesicle-volume distributions (lower part of each graph) and circularities (upper part of each graph) as functions of size. Connected vesicles are shown in grey and isolated ones in black. The black horizontal line above the histograms shows the size range over which coalescence was active just before sample quench. The vertical dashed lines are the magnification limits of the analysed images. Circularities of isolated vesicles marked as dashed lines and connected vesicles as solid lines. The black arrows on each graph show the modes of each of the vesicle populations (Table 7).

The proportions of the three populations were estimated from Gaussian best fits using the KWare SFT software. There is no physical basis for this; it is simply better than eyeballing. Grouping all samples, the modes of the three populations are 10-24 μm (small), 40-142 μm (intermediate) and 455-2299 μm (large) (Table 7). The small population constitutes 15-16% of the vesicularity of the breadcrust bombs rinds, 62-71% of that of the breadcrust bombs interiors and 38-53% of that of the pumices. The intermediate and large populations account for 25-44% and 12-37% of pumice vesicularity, respectively.

Vesicle size distributions can also be plotted using vesicle population number density, which is equal to the slope of the cumulative number distribution (Figure 69). Number distributions are dominated by the smallest vesicles; in our samples more than 99% of the vesicularity in number terms consists of vesicles of the small population. The distributions are curved for all samples and at all size scales, emphasizing the importance of coalescence of vesicles larger than a few μm . If number distributions are redrawn cumulatively (Figure 70), then all samples define approximately linear trends at $>30 \mu\text{m}$. Linear trends on such plots depict power-law distributions, the slope being a fractal dimension (Gaonac'h et al. 1996a, b; Blower et al. 2001). The data give slopes ranging from -1.9 to -3.4, being lowest in pumices (-2.9 to -3.4), intermediate in breadcrust-bomb interiors (-2.7 to -2.8) and highest in breadcrust-bomb rinds (-1.9 to -2.3; Table 7). Vesicles smaller than $\sim 30 \mu\text{m}$ fall off the power-law trends, defining a different tendency. Total vesicle number densities range from 10 to $67 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$, the errors assuming measurement of vesicle numbers to within $\pm 5\%$ on individual images. Values for isolated vesicles alone range from 10 to $29 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$. No systematic correlation with pyroclast vesicularity is observed.

A vesicle circularity index $C = 4\pi A / P^2$ (A is surface area and P is perimeter) is plotted on Figure 68 as a function of vesicle size, with separate curves for isolated and connected vesicles. A spherical vesicle would have a $C \approx 1$, whereas a chain of recently coalesced vesicles would approach $C \approx 0$. Isolated vesicles are systematically more circular than connected ones of similar size. Despite some artefacts related to image magnification limits (e.g., ~ 40 and $\sim 250 \mu\text{m}$ in AMO29), C values of connected vesicles in general decrease

with increasing vesicle size throughout the intermediate and large populations, consistent with their more ragged shapes inherited from coalescence, the number of coalescence events increasing with vesicle size.

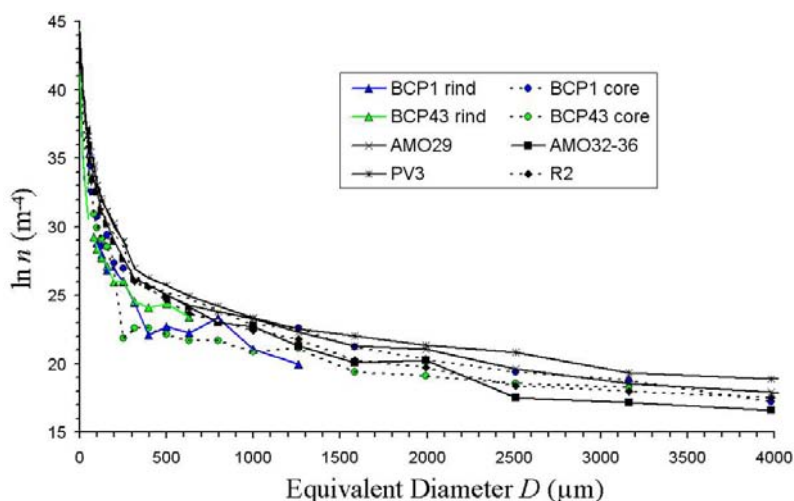


Figure 69. Vesicle size distributions ($\ln n$ vs. D) for the eight pyroclasts analysed in detail.

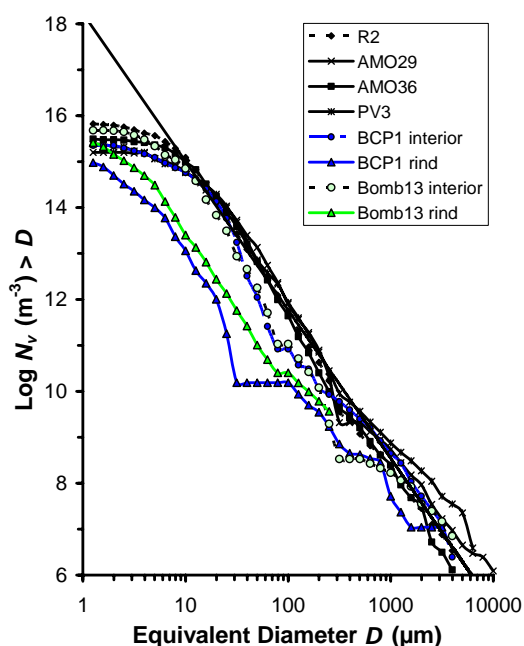


Figure 70. Cumulative number densities ($N_v > D$) for the eight pyroclasts analysed in detail.

Crystal volume distributions for the six pyroclasts (Figure 71) are presented for comparison with the vesicle distributions. Two main populations can be recognised: phenocrysts larger than a few hundred μm , and microphenocrysts and microlites of ~ 300 to $1 \mu\text{m}$, a bimodality being present in three samples (AMO29, AMO36 and R2). Total crystal contents, calculated vesicle-free, are lowest (55 vol%) in the most vesicular pumice (PV3), intermediate in denser pumices (66-73 vol%; AMO29; AMO36 and R2), and highest in the breadcrust bombs (54-79 vol%) (Table 7). This is due primarily to a greater abundance of microphenocrysts and microlites in the denser pyroclasts (Figure 71), as observed by other

authors (Murphy et al. 1998; Clarke et al. 2007). Total glass-referenced crystal number densities range from 131 to $357 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$, values for Fe-Ti oxides (mainly titanomagnetite) alone being 77 to $174 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$. No systematic variations of crystal number density with pyroclast type, or between rinds and cores of breadcrust bombs, are observed. There is no correlation between crystal and vesicle number densities.

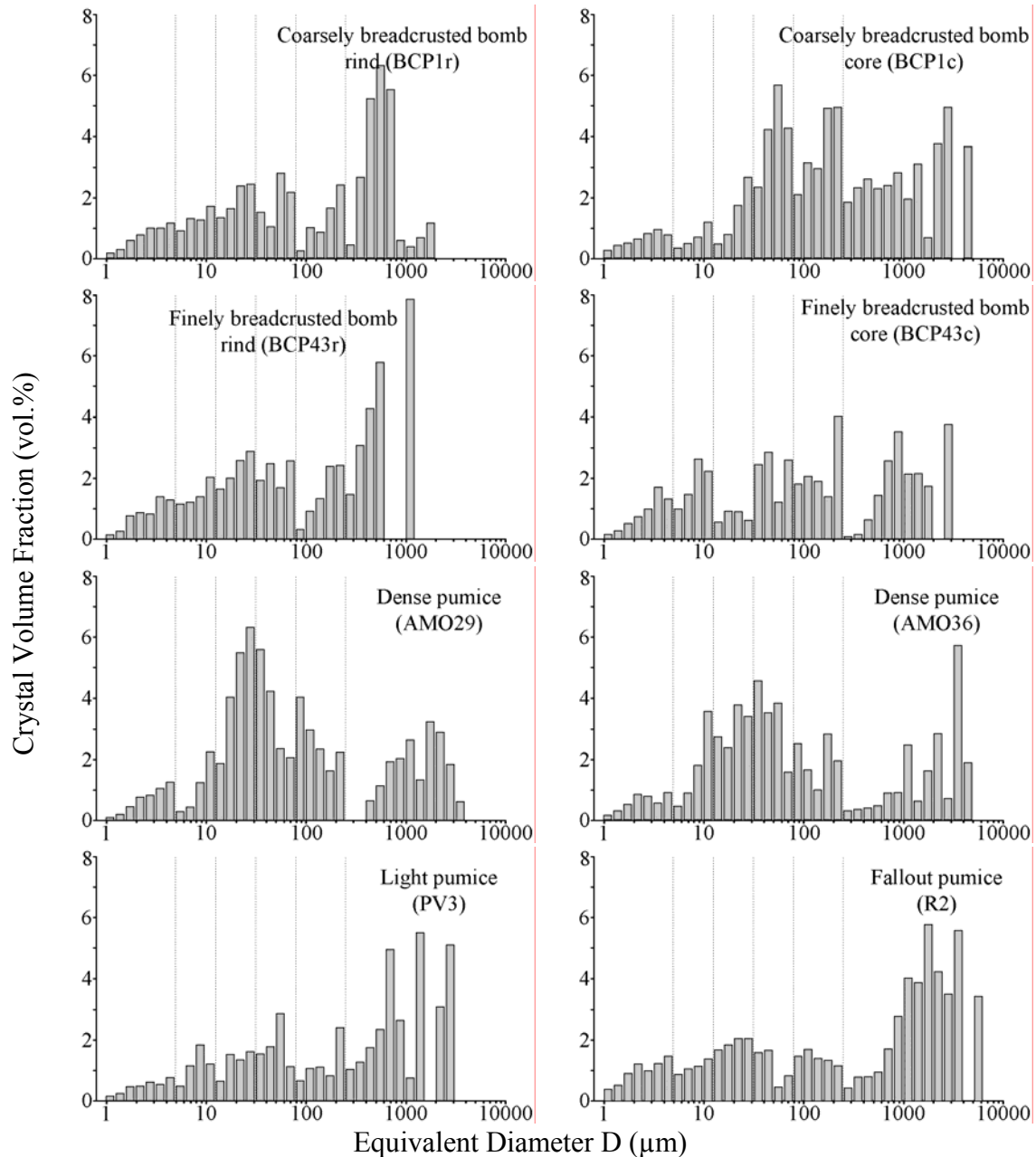


Figure 71. Glass-referenced crystal volume distributions.

III.4.9 Discussion

III.4.9.a Pre-explosion conduit stratigraphy

Previous studies enable us to reconstruct conduit stratigraphy immediately prior to an average 1997 explosion. Approximate conduit pressures for the explosion pyroclasts have

been estimated using two independent methods, microlite abundance and groundmass-glass water content, both of which yield similar results (Clarke et al. 2007; Burgisser et al, in prep). Glassy lava, breadcrust bombs and poorly vesicular (<40 vol%) pumices yield P_{H_2O} of 0-10 MPa, whereas more vesicular pumices (>40 vol%) yield up to 55 MPa. The data are consistent with the existence of a dominant, gas-rich zone (highly vesicular pumices) that passed upwards into a thin, largely degassed plug (lava fragments and breadcrust bombs) through a partly degassed region (dense pumices) (Burgisser et al. in prep). This interpretation ignores possible horizontal variations in the conduit (Kennedy et al. 2005), but probably captures the first order features of conduit stratigraphy. Variations in pyroclast proportions between different pyroclastic flow lobes are attributed to withdrawal from different levels in the conduit, lobes richer in dense pumice being derived from higher levels of the conduit and those richer in more vesicular pumice coming from deeper.

Crystals in the pyroclasts are interpreted as having grown prior to eruption, either at depth or during slow viscous ascent between explosions (Clarke et al. 2007). This is supported by the lack of correlation between the number densities of crystals (>1 μm , the limit of our measurements) and vesicles in our samples, as well as by the presence of high crystal number densities in the rinds of coarsely breadcrusted bombs (Table 7).

III.4.9.b Origins of the vesicle populations

We summarise evidence for the origins of the three vesicle populations observed in the explosion pyroclasts, using the following terminology. A vesicle is ‘syn-explosive’ if it nucleated during and/or immediately following the explosion that ejected its host pyroclast. It is ‘pre-explosive’ if it already existed prior to the explosion in question, having nucleated either during previous explosions and/or during the 3-63 hours of slow viscous ascent between explosions.

Vesicles of the small population are present in all pyroclasts, and are interpreted as having nucleated and grown syn-explosively. The principal argument is that they dominate the interiors of coarsely breadcrusted bombs, in which a syn-explosive origin is unambiguous. Rind vesicularities represent the state of the bomb prior to the onset of surface quenching (Walker 1982; Wright et al. 2007). Coarsely breadcrusted bombs are inferred to have inflated from essentially non-vesicular initial states as shown by the common presence in the rinds of large areas of vesicle-free groundmass. All vesicles in the interiors must therefore have post-dated magma fragmentation. The small size, high sphericity and high isolated fraction of these vesicles is consistent with nucleation and rapid growth shortly before quenching (e.g.

Mourtada-Bonnefoi and Laporte 2002; Mangan et al. 2004; Gardner and Denis 2004). The similarity between small vesicles in the pumices and finely breadcrusted bombs with those in the coarsely breadcrusted bombs leads us to interpret all vesicles of this population as syn-explosive.

Vesicles of the intermediate population occur in all pumices as a coarse tail to the small population; they are also present in minor quantities in the interiors of finely breadcrusted bombs, but are absent from coarsely breadcrusted bombs. Since many are observed to have formed by coalescence of the small-population vesicles, they too must be largely syn-explosive in origin. Some appear to have inherited their sizes from internally coalesced vesicle clusters, perhaps explaining the distinct small and intermediate size peaks in some pumices (Figure 68).

Large-population vesicles are interpreted as having a mixed origin. Those in the breadcrust bombs are invariably amphibole-associated voids that must be syn-explosive because (1) they are present in the interiors of coarsely breadcrusted bombs, but rare in the rinds, (2) they are commonly traversed by delicate glass filaments indicative of a very late-stage origin, and (3) if pre-eruptive, they would have been filled by melt prior to eruption. The ~15% of large vesicles associated with boudinaged amphiboles in pumices are also inferred to be syn-explosive, for the same reasons. The remaining ~85% of large vesicles in pumices are not associated with phenocrysts, and may be pre-eruptive in origin, although possibly enlarged by syn-explosive decompression. This is supported by the abundance in some dense pumices of fissure-like networks of large vesicles that appear to be too well developed to have formed during explosion, and which are tentatively interpreted as having acted as outgassing pathways prior to explosion.

Some cm-sized ductile tears and cracks parallel to flow banding or clast margins commonly observed in large pumice blocks are envisaged to have formed syn-explosively due to stresses imparted on the clasts during ballistic impact or transport in pyroclastic flows.

Ignoring second-order modes, the vesicle-size distributions of all pumices and breadcrust-bomb interiors are essentially bimodal (Figure 68), with a gap from a hundred to a few hundred μm . Vesicle bimodality is observed commonly in pyroclasts from explosive eruptions (Witham and Sparks 1986, Klug et al. 2002). In the breadcrust bombs, it is explained by syn-explosive vesiculation at two scales: (1) nucleation and growth of small bubbles and (2) formation of large voids, the sizes of which are imposed by those of

amphibole phenocrysts. Bimodality in the pumices is tentatively explained by combining (1) vesicles formed by syn-explosive nucleation, growth and coalescence (small and intermediate populations) with (2) a large population composed of syn-explosive, phenocryst-related voids and pre-eruptive bubbles.

Interestingly, the size gaps in the pumice vesicle-size distributions correspond approximately with gaps in corresponding crystal size distributions. Crystals in all four pumices have size gaps between microlite/microphenocryst and phenocryst populations that coincide approximately with those of vesicles. This is a real feature, not a measurement artefact. Since the short explosion timescale does not permit significant syn-explosive crystal growth, any interrelationship must involve length-scale imposition on growing bubbles by crystals that were already present. Crystals, being rigid objects, will influence the sizes, shapes and distributions of nearby bubbles (e.g. Figure 64d). Voids created by crystal fracture will have length scales imposed on them by the crystal.

III.4.9.c Amounts of pre-explosive and syn-explosive vesiculation

Syn-explosive vesicularity includes the small and intermediate populations, all the large population in breadcrust bombs, and at least ~15% of the large population in pumices. The breadcrust bombs inflated from essentially non-vesicular magma, whereas the pumices had pre-eruptive porosities corresponding to no more than ~85% of the large population, quantified as follows. Define the following component fractions: X_{lv} (large vesicles), X_{siv} (small + intermediate vesicles), X_{xt} (crystals) and X_{gl} (glass). Pre-eruptive pumice vesicularity is given by $100 \times 0.85X_{lv} / (0.85X_{lv} + X_{xt} + X_{gl})$, which yields 12-47 vol% for the pumices in Table 7, being greatest for the most vesicular pumice (47%; PV3). These are maximum estimates, because the pre-eruptive bubbles could have expanded during explosion decompression.

An independent estimate is provided by uniaxially boudinaged (type 1) amphibole phenocrysts in pumice, which are interpreted as providing a measure of strain during syn-explosive expansion (Figure 65). Although the strain recorded by some isotropically fractured (type 2) amphiboles could be partly due to gas release from vesiculated melt inclusions, we consider it unlikely that this is the case for the uniaxial case. The apparent strain varies widely between pyroclasts, probably due to different amounts of syn-explosive vesiculation as well as variable degrees of slip between melt and solid at the crystal surface, but the largest values (void length divided by crystal length) are about 2/3. Now defining X_{pre} as the fraction of pre-explosion vesicles, then $X_{lv} + X_{siv} - X_{pre}$ is the fraction of syn-explosive vesicles and we have

$(X_{lv}+X_{siv}-X_{pre}) / (X_{pre}+X_{xt}+X_{gl}) \approx 2/3$. Solving this for X_{pre} and converting to vesicularity yields maximum pre-eruptive porosities of 27-57%, which are similar to the previous estimates and again greatest for the most vesicular pumice (57%). Amphibole boudinage is therefore consistent with the small and intermediate vesicle populations in pumices being syn-explosive in origin. We conclude that pre-eruptive porosity in the deep, gas-rich zone of the conduit was <55%.

III.4.9.d Timing of syn-explosive vesiculation

Breadcrust bombs and pumices preserve evidence for different vesiculation histories. Bubble nucleation and growth in the pumices was essentially confined to the conduit, based on the following evidence. First, the absence of vesicularity gradients and breadcrusting in pumices shows that inflation was complete before surface quench in contact with the air. Second, flow and fall pumices have similar vesicle textures, contents and size distributions, despite different thermal histories once exited the vent. Third, the existence of amphiboles boudinaged uniaxially in the plane of flow lineation shows that vesiculation of at least ~45% of pumices was well advanced prior to fragmentation in order for the boudinage to be uniaxial. More complex modes of amphibole breakage, both perpendicular and parallel to crystal length, may be due to increasingly isotropic decompression and inflation as fragmentation generated progressively smaller, more equant magma parcels. Syn-explosive vesiculation in pumices commenced prior to fragmentation, and in many cases continued after fragmentation, but was complete prior to the onset of surface cooling. The peak phase of each explosion typically lasted a few tens of seconds (Druitt et al. 2002). Once in the air, pyroclast surfaces cooled quickly (another 10-20 s), causing rapid disappearance of incandescence on night video footage. Vesiculation was therefore complete in less than a minute after explosion onset, even for the deepest-derived magma. Only late-stage impact-generated tearing and fracturing of pumices generated further voidage.

Being derived from the top of the conduit, initially non-vesicular magma of the coarsely breadcrusted bombs was fragmented and entered the air almost immediately after explosion onset. Immediate cooling quenched the bomb surface, while the hot core inflated. Near-universal abrasion of rinds and interiors shows that bomb inflation was complete well before the pyroclastic flows ceased movement, ~300 s later. Detailed work on breadcrust bombs at Pinchincha Volcano also documented rapid bomb inflation (Wright et al. 2007). The histories of finely breadcrusted bombs are inferred to have been intermediate between those of pumices and coarsely breadcrusted bombs. Being derived from slightly deeper in the conduit,

there was some time for initial bubble nucleation and growth throughout before the surface was quenched and further inflation limited to the interior.

Syn-explosive vesiculation was controlled principally by the time available between the onset of decompression and thermal quench (Figure 72). This was shortest for the breadcrust bomb rinds, intermediate for the bomb interiors, and longest for the pumices. Neo-formed vesicles preserved in the rapidly quenched rinds of breadcrust bombs are small and isolated. During inflation of the more slowly cooled interiors, these vesicles grew (shifting the mode of the isolated ones) and began to coalesce. Syn-explosive coalescence is most advanced in the pumices, because the time available between decompression onset and quench was longest.

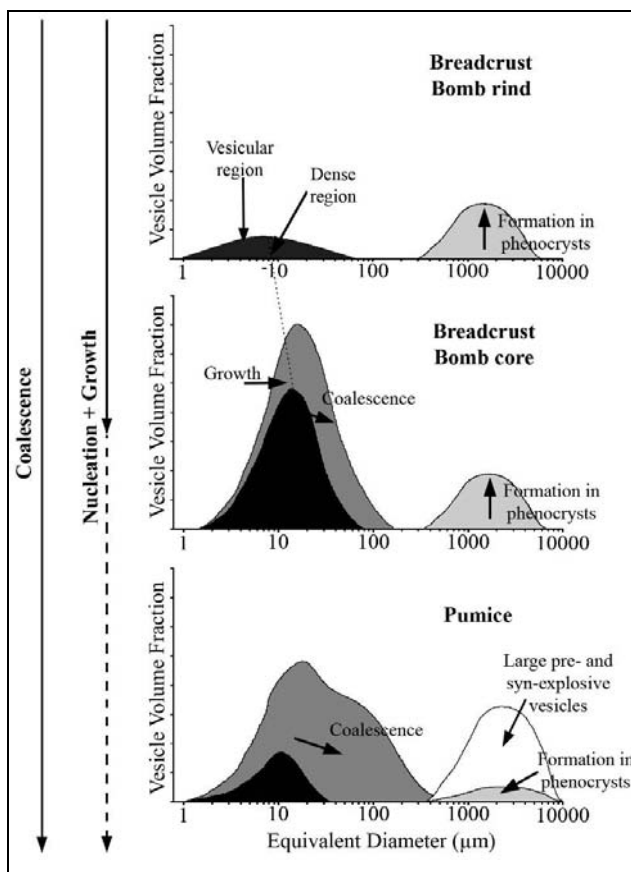


Figure 72. Schematic illustration showing the development of vesicle volume distributions of breadcrust-bomb rinds, breadcrust-bomb interiors and pumices. Isolated syn-explosive vesicles in black and connected syn-explosive vesicles in grey. Those in light grey are angular voids formed by syn-explosive fracturing of amphibole phenocrysts. Large, pre-explosive vesicles in pumices are shown in white. Coalescence to form the intermediate-sized vesicles (dark grey) is most advanced in the pumices.

III.4.9.e Mechanisms of syn-explosive vesiculation

- Bubble nucleation

Homogeneous nucleation in water-rich rhyolitic melts requires supersaturation pressures of 60-310 MPa (Mourtada-Bonnefoi and Laporte 1999, 2002; Mangan and Sisson 2000), which exceed the decompressions of a few to ~55 MPa experienced by the pyroclasts (Burgisser et al. in prep). This implies that syn-explosive nucleation took place

heterogeneously. Of the crystalline phases present in Soufrière Hills magma, only titanomagnetite has been shown to provide effective sites for bubble nucleation at supersaturations as low as a few MPa (Hurwitz and Navon 1994; Gardner et al. 1999; 2000; Gardner and Denis 2004; Gardner 2007; Cluzel et al. 2008). Moreover, Fe-Ti oxides (mostly titanomagnetite) are present in the explosion pyroclasts with number densities 1.4 to 9 times higher than those of vesicles, showing that sufficient nucleation sites were available (Table 7). Textures observed on SEM images are consistent with bubble nucleation on titanomagnetite (Figure 66).

The number densities of small and intermediate vesicles (Table 7) permit estimation of syn-explosive decompression rates (Toramaru 2006; Cluzel et al. 2008). Nucleation generates a stationary bubble number density N_{stat} that is independent of saturation pressure, but dependent on dP/dt :

$$\left| \frac{dP}{dt} \right| \approx aD\sigma^2 \left(\frac{N_{stat}^4}{P_{sat}^2 T^3} \right)^{1/6} \quad [46]$$

where D is water diffusivity, σ is interfacial surface tension between melt and vapour, P_{sat} is initial saturation pressure, T is absolute temperature, and a is a constant (3.5×10^{14} in SI units). For heterogeneous nucleation, σ is replaced by an effective value in the presence of the crystalline phase. Heterogeneous bubble number densities N theoretically vary both with number of available nucleation sites and decompression rate, with two cases (Cluzel et al. 2008): (1) the density of available nucleation sites N_n is greater than N_{stat} , in which case $N \approx N_{stat}$ and N depends only on dP/dt through equation [46]; (2) $N_n < N_{stat}$, in which case $N \approx N_n$ ($< N_{stat}$), and the equation cannot be used. Since oxide number densities in our samples are much higher than vesicle number densities (case 1), we can use N to estimate dP/dt . This assumes that sufficient time was available for bubble number densities to reach stationary values prior to quench; if not, dP/dt is under-estimated.

We calculate syn-explosive dP/dt values for a typical breadcrust bomb interior, a dense pumice and a highly vesicular pumice using our data for N (Table 7), the interstitial glass water contents and P_{sat} estimations of Burgisser et al. (in prep), and $\sigma \sim 0.025 \text{ N.m}^{-1}$ appropriate for nucleation on titanomagnetite (Cluzel et al. 2008). The values range from 0.3 to 6.5 MPa.s^{-1} , with no correlation with pyroclast type.

- Bubble growth

Bubble growth is driven by decompression and volatile diffusion, and resisted by melt viscosity (Sparks 1978; Thomas et al. 1994; Gardner et al. 1996; Proussevitch and Sahagian 1996; Gardner et al. 2000). Growth during decompression from an initial pressure P_i is governed by three characteristic timescales (Lensky et al. 2004): a decompression time τ_{dec} , a diffusive time $\tau_{diff} = R_i^2 / D_i$ and a viscous relaxation time $\tau_{visc} = 4\eta_i / P_i$, where R_i (μm) is bubble radius, D_i ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$) is diffusion coefficient at the initial stages of growth, P_i (Pa) is initial saturation pressure and η_i (Pa.s) is initial melt viscosity. If $\tau_{visc} \geq \tau_{dec}$, then viscosity is high enough to significantly inhibit bubble growth, whereas if $\tau_{visc} \ll \tau_{dec}$, then bubbles can expand freely to ambient pressure. The latter regime can in turn be subdivided. If diffusion is fast relative to decompression, $\tau_{diff} \ll \tau_{dec}$, then degassing takes place at equilibrium and bubbles grow by both diffusion and decompression-driven expansion, whereas if the converse is true, diffusive transfer is negligible and bubbles grow by decompression-driven expansion alone.

The three timescales are estimated for the explosion pyroclasts in Table 8. We also included a typical breadcrust bomb rind at a temperature close to that of the glass transition ($\sim 700^\circ\text{C}$ in silicic melts with 1-3 wt%; Dingwell 1998). As discussed above, decompression of a breadcrust bomb from the top of the conduit took place over ~ 10 s, whereas pumices from deeper in the conduit took a few tens of s. Consider the case of a 10- μm -diameter syn-explosive bubble. For the pumices we find that $\tau_{dec} \geq \tau_{diff} \gg \tau_{visc}$, implying that melt viscosity was sufficiently low for bubbles to expand freely to near-ambient pressure. Diffusion was able to occur on the timescale of decompression, but was insufficiently fast to attain equilibrium, in agreement with high remnant water contents in interstitial glasses. For the breadcrust bomb interior $\tau_{dec} \geq \tau_{diff} > \tau_{visc}$, implying again disequilibrium outgassing, but also that viscosity was high enough at these lower water contents to now partially limit bubble growth. Finally, cooling of the breadcrust bomb rind has the combined effect of significantly raising melt viscosity and slowing diffusion, such that $\tau_{visc} \gg \tau_{diff} > \tau_{dec}$ and any bubbles that nucleated were unable to grow on the timescale available (i.e., they were viscosity-quenched; Thomas et al. 1994), again in agreement with observations.

- Bubble coalescence

Textural evidence for coalescence is found in all vesicle size classes; only the small population contains isolated vesicles. Bubble-wall thinning and rupture in an expanding foam is driven by bubble growth and pressure gradients (Navon and Lyakhovsky 1998). Abundant

<1 μm bubble walls, sometimes with wavy, unstable forms, are consistent with rupture at about this thickness (Klug and Cashman 1996). Number-size distributions for vesicles larger than a few tens of microns have power-law shapes with fractal dimensions of -1.9 to -3.4 attributed to coalescence (Gaonac'h et al. 1996a, b; Klug et al. 2002). Pumice fractal dimensions are similar to those at Mount Mazama (-3.0 to -3.5; Klug et al., 2002), and slightly higher than those at Novarupta (-3.9; Adams et al. 2006). The degree of coalescence increases from breadcrust-bomb rinds, to breadcrust-bomb interiors, to pumices, as witnessed by progressively lower fractal dimensions (-1.9 to -2.3, -2.7 to -2.8 and -2.9 to -3.4, respectively) and higher proportions of intermediate-sized vesicles (Table 7, 0 to 9, and 25 to 44%, respectively). This is attributed to the progressively longer time interval between decompression (and bubble nucleation) and quench. Moreover, the fraction of isolated vesicles is in general lower in pumices than in breadcrust bombs, based on either pycnometry or image-analysis data (Table 8). Advanced coalescence on timescales of a few to a few tens of seconds is consistent with laboratory experiments on vesiculating rhyolitic melts (Westrich and Eichelberger 1994; Navon and Lyakhovsky 1998; Larsen et al. 2004; Burgisser and Gardner 2005).

Coalescence continued in the hot interiors of >30 cm pumices for some time after eruption, forming bubbles up to a cm or more in some metre-sized clasts. The lack of systematic radial vesicularity gradients and surface breadcrusting show that this must have taken place without expansion. Coalescence in a static foam is driven by capillary forces and gravitational drainage of melt films (Navon and Lyakhovsky 1998). It must have taken place on a timescale shorter than that required for the cores of large pumices to cool from magmatic temperature ($\sim 850^\circ\text{C}$) through the glass transition ($\sim 700^\circ\text{C}$; Dingwell 1998). The time for the core temperature of a sphere of diameter d to cool conductively by 20% in contact with air is $0.08d^2/4k$, where k is thermal diffusivity (Carslaw and Jaeger 1959, section 9.3.IV). Thermal diffusivity of pumice is a function of temperature, with a value of $3 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ at 800°C (Bagdassarov et al. 1994); internal heat transfer by convection or radiation can be neglected (Hort and Gardner 2000). This yields ~ 2 hours for a 30-cm pumice, which is consistent with the authors' observations (THD) that dm-sized pumices were only warm to the touch a day after emplacement. The value for a 1-m pumice is ~ 20 hours, so that static coalescence may have continued for almost a day in the largest pumices. These estimates ignore premature cooling by rain. Any air circulation was insufficient to oxidize the hot clast interiors during cooling (Tait et al. 1998).

III.4.9.f Eruptive model

The results are now placed in the context of the eruptive model proposed in previous papers (Druitt et al. 2002; Melnik and Sparks 2002; Clarke et al. 2002; Formenti et al. 2003; Diller et al. 2006; Clarke et al. 2007, Burgisser et al. in prep) and illustrated in Figure 73.

Magma ascended by viscous flow during the 3-63 hours between explosions. The mean ascent velocity during this time was $\geq 0.02 \text{ m.s}^{-1}$, corresponding to a magmastatic decompression rate of $0.001\text{-}0.005 \text{ MPa.s}^{-1}$. Many large vesicles in the pumices may represent bubbles nucleated between explosions, the number densities of large vesicles being consistent (via eq. 46) with nucleation at such decompression rates. Other large vesicles may be the coalesced remnants of bubbles nucleated at higher number densities during previous explosions. Inter-explosion coalescence generated the permeability necessary for gas escape from the ascending magma, as reflected in the low water contents of matrix glasses in dense pumices, breadcrust bombs and glassy lava fragments (Burgisser et al. in prep). Possible relict gas-escape paths are preserved in dense pumices as networks of interconnected channels. Alternating bands of variable vesicularity in some flow-banded dense pumices and finely breadcrusted bombs may record the process of densification induced by differential outgassing, quenched in progress. Outgassing induced microlite growth. Immediately prior to an average explosion, the conduit consisted of a deep, homogeneous, gas-rich zone with $<55 \text{ vol\%}$ voidage overlain by an impermeable degassed, microlite-rich and rheologically stiffened plug, behind which gas pressure accumulated in a transition region of partly degassed magma (Diller et al. 2006; Burgisser et al. in prep; Figure 73a).

Plug rupture occurred once overpressure exceeded a critical threshold, probably of a few MPa or more (Druitt et al. 2002; Spieler et al. 2004b; Burgisser et al. in prep). Decompression caused upward expansion, acceleration, fragmentation and eruption of the conduit contents (Melnik and Sparks 2002; Mason et al. 2006). Coarsely breadcrusted bombs, finely breadcrusted bombs, dense pumices and light pumices form a continuous assemblage, the textural features of which can be understood by differences in the relative timing of initial decompression, fragmentation, and surface quench. Largely degassed, non-vesicular, microlite-rich magma of the upper part of the plug underwent decompressions of a few MPa and entered the atmosphere immediately after fragmentation. Cooling during flight limited bubble growth in surface layers, whereas the hotter interiors frothed up, cracking the outer rind and breaking amphibole phenocrysts. These clasts, characterized by a large vesicularity difference between core and rind, form the coarsely breadcrusted bombs (Figure 73b). Dense

magma fragments from deeper in the plug followed a similar history, but the time interval between decompression and discharge was slightly longer, allowing more bubble growth in the surface rind prior to quench. The vesicularity contrast between surfaces and cores of the finely breadcrusted bombs is therefore smaller. Some coarsely breadcrusted bombs that broke either during ballistic impact or transport in pyroclastic flows developed finely breadcrusted surfaces on breakage surfaces. In all bombs, core inflation and breadcrusting was complete long before pyroclastic flows came to rest.

The time interval between decompression and discharge of the deep, gas-rich magma was sufficiently long that syn-explosive inflation was complete prior to surface quench (Figure 73c). This accounts for the lack of surface breadcrusting, the apparent lack of dependence of vesicle textures on clast size (up to ~30 cm), and the textural similarities between flow and fallout pumices, despite different thermal histories after leaving the vent. It also allowed coalescence of newly formed bubbles to proceed further than in the breadcrust bombs. As pumices inflated, many amphibole phenocrysts were broken in a manner suggestive of isotropic decompression in parcels of fragmented magma. However uniaxial, flow-foliation-parallel boudinage of amphiboles implies that syn-explosive vesiculation of many pumices, possibly those from deeper in the conduit, was essentially complete even prior to fragmentation.

Syn-explosive bubble nucleation at all levels of the conduit took place heterogeneously on titanomagnetite. Growth took place under disequilibrium conditions largely by decompression-driven expansion; diffusive outgassing of melt was limited by the short timescale of the explosions, accounting for the high water contents preserved in matrix glasses.

Decompression rates estimated from heterogeneously nucleated vesicle number densities (at least $0.3\text{--}6.5 \text{ MPa.s}^{-1}$) are an order of magnitude lower than were homogeneous nucleation assumed (e.g. Toramaru 2006; Hamada et al. submitted). However they may be under-estimated if there was insufficient time for bubble numbers to reach static values. Plug rupture during Vulcanian eruptions generates a downward-propagating rarefaction wave, followed by a slower fragmentation wave (Melnik and Sparks 2002; Koyaguchi et al. 2008), the ascent speed of the bubbly magma being a great deal slower than either. A zone of steep pressure gradient develops beneath the fragmentation surface due to the discontinuous pressure change at the fragmentation surface and wall friction. Individual parcels of magma in an average Montserrat explosion simulated by Melnik and Sparks (2002; their Fig. 4)

experience decompression rates of ~ 1 to $>20 \text{ MPa.s}^{-1}$ as they approach, then pass through, the descending fragmentation surface. These values are of the same order of magnitude as those estimated from vesicle number densities, showing that there is no incompatibility between observations and models. They are consistent with the idea that syn-explosive bubble nucleation during the 1997 explosions was initiated during rapid decompression of conduit magma in a zone of steep pressure gradient beneath the descending fragmentation level.

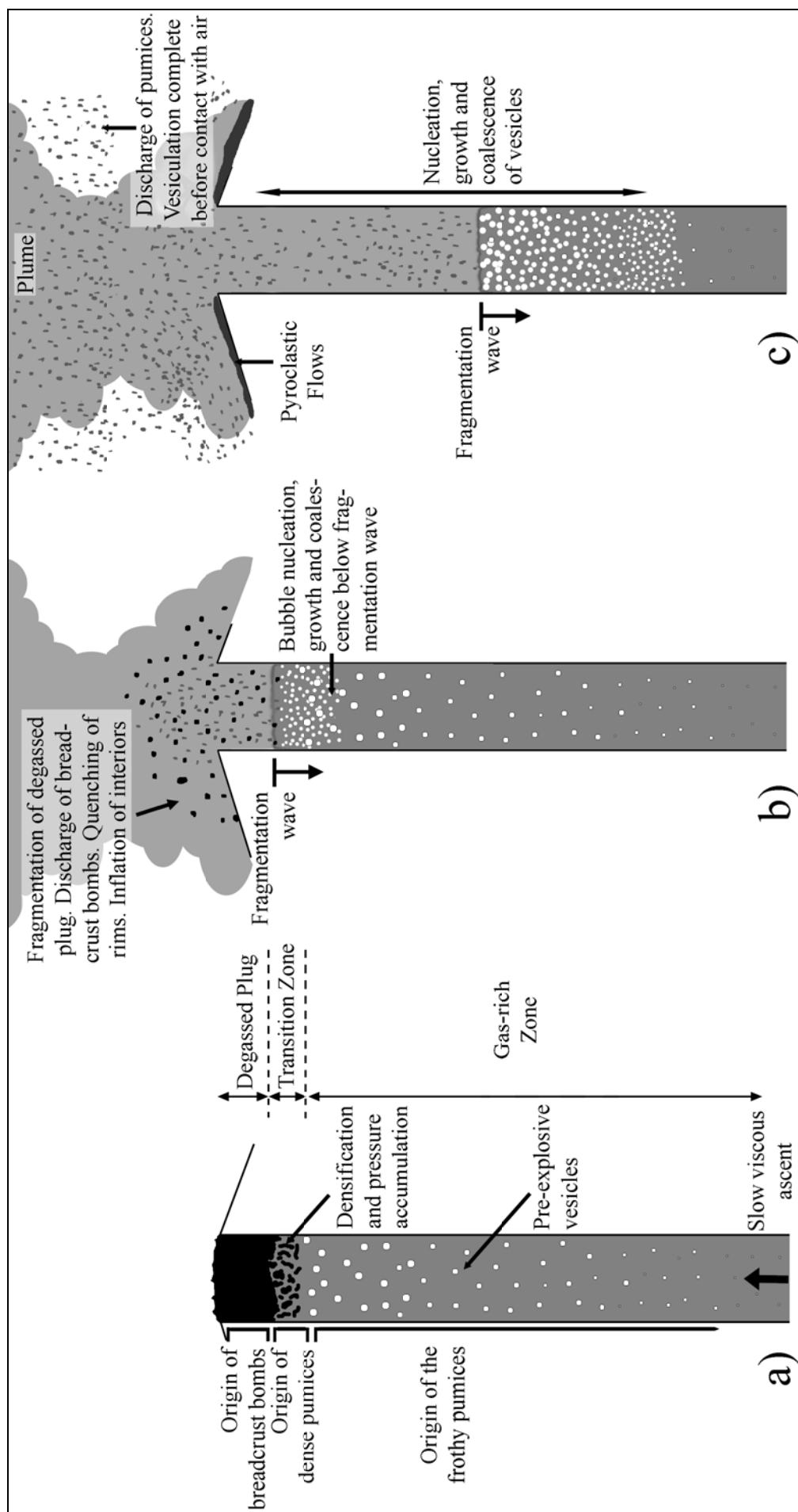


Figure 73. Summary of vesiculation processes during an average 1997 Vulcanian explosion.

Tableau 7. Results of textural analysis of explosion pyroclasts

	BCP1 rind	BCP43 rind	BCP1 interior	BCP43 interior	AMO29	AMO36	PV3	R2	
Sample type	Coarsely breadcrusted bomb rind	Finely breadcrusted bomb rind	Coarsely breadcrusted bomb interior	Finely breadcrusted bomb interior	Pyroclastic flow pumice (dense)	Pyroclastic flow pumice (dense)	Pyroclastic flow pumice (highly vesicular)	Fallout pumice (dense)	
Bulk Vesicularity – He-Pycnometry (vol.%)	8 ± 2	12 ± 2	33 ± 2	49 ± 1	58 ± 1	61 ± 1	76 ± 1	-	
Isolated fraction – He-Pycnometry (vol.%)	1.00	-	0.33	0.13	0.15	0.09	0.09	-	
Bulk Vesicularity – 2D analysis (vol.%)	9 ± 2	9 ± 2	36 ± 2	48 ± 2	61 ± 2	57 ± 2	74 ± 2	56 ± 2	
Isolated fraction– 2D analysis (vol.%)	0.13	0.37	0.23	0.46	0.09	0.07	0.11	0.17	
Crystallinity vesicle-free– 2D analysis (vol.%)	54	59	79	54	73	66	55	69	
Glass – 2D analysis (vol.%)	46	41	21	46	27	34	45	31	
Modes of vesicle pops. ^a (μm)	Small Intermediate Large	10 14 455	20 - 1221	20 142 2299	23 82 1879	16 40 735	24 135 2145	13 80 1432	
Fraction of vesicle pops. ^a (vol.% of bulk vesicularity)	Small Intermediate Large	15 - 85	37 - 63	62 - 38	40 31 29	42 44 12	38 25 37	53 34 13	
Cheng and Lemlich (1983)	N _v all vesicles (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	9.5 ± 0.4	26.2 ± 1.1	22.6 ± 1.2	48.0 ± 2.8	15.9 ± 1.0	31.1 ± 3.7	23.9 ± 2.0	66.8 ± 4.9
	N _v connected vesicles (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	0.0 ± 0.0	0.0 ± 0.0	17.9 ± 1.0	18.6 ± 1.2	7.5 ± 0.6	22.9 ± 3.4	17.8 ± 1.4	48.8 ± 4.1
	N _v isolated vesicles (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	9.5 ± 0.4	26.2 ± 1.1	4.6 ± 0.2	29.4 ± 1.6	8.3 ± 0.4	8.2 ± 0.3	6.1 ± 0.7	18.0 ± 0.9
	N _v crystals (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	139 ± 4	162 ± 4	357 ± 9	137 ± 4	177 ± 5	170 ± 4	131 ± 3	357 ± 8
Sahagian and Proussevitch (1998)	N _v oxides (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	83 ± 2	101 ± 3	174 ± 5	89 ± 3	77 ± 2	82 ± 2	97 ± 2	163 ± 4
	N _v all vesicles (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	9.9 ± 0.4	26.8 ± 1.1	21.7 ± 1.3	43.4 ± 3.0	15.9 ± 1.1	27.8 ± 4.3	25.7 ± 2.5	57.5 ± 5.1
	N _v connected vesicles (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	0.0 ± 0.0	0.0 ± 0.0	17.1 ± 1.1	18.0 ± 1.3	7.4 ± 0.6	20.2 ± 4.0	19.1 ± 1.7	41.2 ± 4.2
	N _v isolated vesicles (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	9.9 ± 0.4	26.8 ± 1.1	4.5 ± 0.2	25.4 ± 1.7	8.5 ± 0.5	7.6 ± 0.3	6.6 ± 0.9	16.2 ± 0.9
Vesicles number of each pop. (m ⁻³ of melt)	N _v crystals (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	147 ± 3	163 ± 3	413 ± 6	142 ± 3	177 ± 4	182 ± 3	143 ± 2	407 ± 6
	N _v oxides (x10 ¹⁴ m ³ of glass)	96 ± 1	113 ± 2	208 ± 3	101 ± 2	78 ± 1	95 ± 1	112 ± 1	198 ± 3
	Small	9.5 x 10 ⁻⁴	26.2 x 10 ⁻⁴	22.6 x 10 ⁻⁴	48.0 x 10 ⁻⁴	15.7 x 10 ⁻⁴	30.8 x 10 ⁻⁴	23.9 ± 8.5	66.6 x 10 ⁻⁴
	Intermediate Large	- 1.5 x 10 ¹⁰	- 2.5 x 10 ¹⁰	- 8.3 x 10 ¹⁰	1.1 x 10 ¹¹ 3.3 x 10 ⁸	1.4 x 10 ¹³ 2.1 x 10 ⁹	3.8 x 10 ¹³ 9.9 x 10 ⁹	0.4 x 10 ¹³ 9.0 x 10 ⁹	1.2 x 10 ¹³ 2.3 x 10 ⁹
Fractal dimension (d) from 0	1.9	2.3	2.7	2.8	3.1	3.4	2.9	3.3	
	H ₂ O in residual glass (%wt) ^b	0.83±0.13	-	1.10±0.34	-	0.45±0.31	0.74±0.33	1.32±0.14	0.75±0.13 ^c
Quench pressures P _c (MPa) from H ₂ O content ^b	6.1±1.8	-	10.3±5.9	-	1.9±2.5	4.9±4.1	14.5±2.8	5.0±1.5 ^c	
Pre-explosive vesicularity (vol%) estimated by: - Vesicle size populations ^d - Recorded strain by amphiboles ^d	- - -	- - -	- - -	- - -	28 35	11 27	47 57	12 27	

^a Determined using the KWare SFT software
^b From Burgisser et al. (in prep)
^c Unpublished, from S. Pousineau (Personal communication)
^d See text for explanation

Tableau 8. Estimation of timescales pertaining to vesicle growth in explosion pyroclasts.

	Breadcrust bomb rind	Breadcrust bomb interior	Poorly vesicular pumice	Highly vesicular pumice
H ₂ O in melt (wt%) ¹	0.6-1.0	1.1-1.6	0.5-2.0	1.3-2.8
Initial pressure P _{sat} (MPa) ¹	5-10	5-10	10-40	15-65
Temperature T (°C) ²	700	850	850	850
Diffusion coefficient D (m ² .s ⁻¹) ³	0.2-0.5 × 10 ⁻¹²	2.6-4.8 × 10 ⁻¹²	1.3-5.8 × 10 ⁻¹²	2.9-7.7 × 10 ⁻¹²
Bubble number density of the small vesicle population N _{stat} (m ⁻³) ⁴	8.4-31.1 × 10 ¹⁴	21.4-50.8 × 10 ¹⁴	14.9-71.7 × 10 ¹⁴	21.9-25.9 × 10 ¹⁴
Viscosity η (Pa.s) ⁵	3.7-45 × 10 ⁹	1.4-4.8 × 10 ⁶	0.7-52 × 10 ⁶	0.2-2.8 × 10 ⁶
Decompression rate (MPa.s ⁻¹) ³	-	1.3-5.4	0.3-6.5	0.8-3.9
Decompression time τ _{dec} (s) ⁶	10	10	10-50	10-50
Viscous time τ _{vis} (s) ⁶	510-1780	1-2	0.3-5	0.06-0.17
Diffusion time τ _{dif} (s) ⁶	30-72	5-9	4-20	3-9

¹ Burgisser et al. (in prep).

² Harford et al. (2003)

³ Method of Toramaru (2006), using Zhang and Behrens (2000) and Behrens and Zhang (2004), using SiO₂ contents of 76 to 80 wt% for all samples (Barclay et al. 1998) and σ = 0.025 N m⁻¹ for heterogeneous nucleation (Cluzel et al., 2008).

⁴ From Table 3, N, values of BCP1c and BCP43c used for the breadcrust bomb interior and rind, values of AMO36, AMO29 and R2 used for the poorly vesicular pumice and values of PV3 for the highly vesicular pumice.

⁵ Hess and Dingwell (1996).

⁶ Calculated following Lensky et al. (2004); see text for details.

III.4.10 Acknowledgments

This project was partly funded by the French Agence Nationale de la Recherche (ANR-EXPLANT, Contract No ANR-05-CATT-003 to C. Martel). The study benefited from discussions with Stéphane Poussineau, Nicolas Cluzel, Karim Kelfoun, Thomas Shea, Lucia Gurioli, Didier Laporte, Jean-Louis Bourdier and Jim Gardner. Marc Leblanc gave us access to the He pycnometer. Jean-Marc Hénot helped us with the SEM.

III.4.11 Appendix: Size-distribution measurement of vesicles and crystals

Size distributions were measured using images of six overlapping magnifications: (1) 2 images of a thin section and/or cut hand specimen, (2) 2 SEM images at ×27, (3) 2 SEM images at ×100, (4) 4 SEM images at ×200, (5) 4 SEM images at ×500, and (6) 6 SEM images at ×1500. Vesicles or crystals (referred to hereon as ‘objects’) of >300 μm were counted at magnification 1, and those of <300 μm were measured at magnifications 2-6. Size distributions were constructed in four steps as follows:

Step 1. Size distribution for each image. Each image resulted in three binary images (isolated vesicles, connected vesicles, and crystals), which were analysed with the ImageJ image-analysis software. Using the surface area *A* and the scale of the image, an equivalent diameter *D* was calculated for each object (assuming circular shape), and surface area and area number distributions were calculated as functions of *D*. The probability of a large object being intersected by the edge of the image is larger than that of a small object, and we applied

the corrections of Miles (1974) and Lantuéjoul (1980) to obtain the true number of objects (N_a).

Step 2. Size distribution for each magnification. The object size distribution for a given magnification was obtained by averaging those of the separate images for that magnification. This resulted in averaging any heterogeneity in object size or shape distribution present on the microscopic scale, assuming that possible shape variations were randomly oriented. Tests on multiple areas of single pyroclasts showed that this assumption was valid to a first approximation.

Step 3. Size distribution for the whole sample. This third stage generated an object-size distribution for the whole sample using the individual distributions at each magnification. Previous studies performed this step using N_a (Shea et al. submitted), whereas we used object surface areas. We first defined cut-off limits between magnifications, being chosen so that each object had a diameter of at least 15 pixels and was no larger than 10% of the image size (in order to be statistically represented). The limits correspond to $\log D$ values of 2.5, 2.0, 1.6, 1.2 and 0.8, from lowest to highest magnifications, as shown on Figure 68. We then normalised the data at each magnification to the surface area of the lowest magnification, correcting at each magnification for objects larger than the cut-off limits previously defined. This correction was applied starting at the lowest magnification and working progressively upwards. Surface and number distributions were then obtained for the whole sample. In total 930-4,750 crystals and 3,390-9,620 vesicles were measured for each sample. Full explanation and worked examples are available from the first author on request.

Step 4. 2D-3D conversions. Two-dimensional data (N_a and surface distribution) were then converted to 3D (N_v and volume distribution). Since we chose samples with spherical and homogeneously distributed vesicles (at least to the eye), we assumed that the area distribution obtained directly equals the volume distribution. Our method has the advantage of directly providing the total sample vesicularity by integrating the vesicle-volume distribution. Values thus obtained were close to those from He-pycnometry (Table 7), convincing us of the accuracy of our method. Two methods were used to convert N_a to N_v . Cheng and Lemlich (1983) proposed a conversion: $N_v = N_a / D_m$, where D_m is the average equivalent diameter of each size class. This method is easy to apply and involves no assumptions of object shape. However, it does not take into account the cut effect, which is corrected by the method of Sahagian and Proussevitch (1998), assuming spherical shapes. Our results showed object number densities obtained from the two methods were the same to within 15%, and mostly

within 5%. Number density distributions were also very similar. However, since the method of Sahagian and Proussevitch (1998) sometimes generates negative values of N_v for some size classes, values used in the text are those obtained by the method of Cheng and Lemlich (1983).

III.4.12 References

- Adams, N.K., Houghton, B.F., Hildreth, W., 2006. Abrupt transitions during sustained explosive eruptions: examples from the 1912 eruption of Novarupta, Alaska. *Bull. Volcanol.* 69, 189-206.
- Bagdassarov, N.S., Dingwell, D.B., Webb, S.L. 1994. Viscoelasticity of crystal- and bubble-bearing rhyolite melts. *Phys. Earth. Planet. Inter.* 83, 83–89.
- Barclay, J., Rutherford, M.J., Carroll, M.R., Murphy, M.D., Devine, J.D., Gardner, J., Sparks, R.S.J., 1998. Experimental phase equilibria constraints on pre-eruptive storage conditions of the Soufrière Hills magma. *Geophys. Res. Lett.* 25(18), 3437-3440.
- Behrens, H., Zhang, Y., Xu, Z., 2004. H₂O diffusion in dacitic and andesitic melts. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 68, 5139-5150.
- Blower, J.D., Keating, J.P., Mader, H.M., Phillips, J.C., 2001. Inferring degassing processes from vesicle size distributions. *Geophys. Res. Lett.* 28, 347-350.
- Burgisser, A., Gardner, J.E., 2005. Experimental constraints on degassing and permeability in volcanic conduit flow. *Bull. Volcanol.* 67, 42-56.
- Carslaw, H.S., Jaeger J.C., 1959. *Conduction of heat in solids* (2nd Edition). Clarendon Press, Oxford.
- Cheng, H.C., Lemlich, R., 1983. Errors in the measurement of bubble-size distribution in foam. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals* 22, 105–109.
- Clarke, A.B., Neri, A., Voight, B., Macedonio, G., Druitt, T.H., 2002. Computational modelling of the transient dynamics of the August 1997 vulcanian explosions at Soufrière Hills Volcano, Montserrat; influence of initial conduit conditions on near-vent pyroclastic dispersal. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (ed) *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999*. Geological Society of London Memoir, vol. 21, 319-348.
- Clarke, A.B., Stephens, S., Teasdale, R., Sparks, R.S.J., Diller, K., 2007. Petrologic constraints on the decompression history of magma prior to Vulcanian explosions at the Soufrière Hills volcano, Montserrat. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 161, 261-274.
- Cluzel, N., Laporte, D., Provost, A., Kannewischer, I., 2008. Kinetics of heterogeneous bubble nucleation in rhyolitic melts: implications for the number density of bubbles in volcanic conduits and for pumice textures. *Contrib. Mineral. Petrol.* 156, 745-763.
- Cole, P.D., Calder, E.S., Sparks, R.S.J., Clarke, A.B., Druitt, T.H., Young, S.R., Herd, R.A., Harford, C.L., Norton, G.E., 2002. Deposits from dome-collapse and fountain-collapse Pyroclastic flows at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P., (ed) *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999*. Geological Society of London Memoir, vol. 21, 231-262.
- Devine, J.D., Rutherford, M.J., Norton, G.E., Young, S.R., 2003. Magma storage region processes inferred from geochemistry of Fe-Ti oxides in andesitic magma, Soufriere Hills Volcano, Montserrat, WI. *Journal of Petrology* 44, 1375-1400.
- Dingwell, D.B. 1998. The glass transition in hydrous granitic melts. *Physics of The Earth and Planetary Interiors* 107, 1-3.
- Diller, K., Clarke, A.B., Voight, B., Neri, A., 2006. Mechanisms of conduit plug formation: implications for vulcanian explosions. *Geophys. Res. Lett.* 33, L20302.
- Druitt, T.H., Young, S.R., Baptie, B.J., Bonadonna, C., Calder, E.S., Clarke, A.B., Cole, P.D., Harford, C.L., Herd, R.A., Lockett, R., Ryan, G., Voight, B., 2002. Episodes of cyclic vulcanian explosive activity with fountain collapse at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (ed) *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999*. Geological Society of London Memoir, vol. 21, 281-306.
- Formenti, Y., Druitt, T.H., 2003. Vesicle connectivity in pyroclasts and implications for the fluidisation of fountain-collapse pyroclastic flows, Montserrat (West Indies). *Earth Planet. Sci. Lett* 214, 561-574.
- Formenti, Y., Druitt, T.H., Kelfoun, K., 2003. Characterisation of the 1997 Vulcanian explosions of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, by video analysis. *Bull Volcanol.* 65, 587-605.
- Gaonac'h, H., Lovejoy, S., Stix, J., Schertzer, D., 1996a. A scaling growth model for bubbles in basaltic flows. *Earth Planet. Sci. Lett.* 139, 395-409.

Chapitre III. Analyse texturale en deux dimensions des produits des explosions volcaniennes de la Soufrière Hills

- Gaonac'h, H., Stix, J., Lovejoy, S., 1996b. Scaling effects on vesicles shape, size and heterogeneity of lavas from Mount Etna. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 74, 131-153.
- Gardner, J.E., Thomas, R.M.E., Jaupart, C., Tait S., 1996. Fragmentation of magma during Plinian volcanic eruptions. *Bull. Volcanol.* 58, 144-162.
- Gardner, J.E., Hilton, M., Carroll, M.E.R., 1999. Experimental constraints on degassing of magma: Isothermal bubble growth during continuous decompression from high pressure. *Earth Planet. Sci. Lett.* 168, 201-218.
- Gardner, J.E., Hilton, M., Carroll, M.E.R., 2000. Bubble growth in highly viscous silicate melts during continuous decompression from high pressure. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 64, 1473-1483.
- Gardner, J.E., Denis, M.-H., 2004. Heterogeneous bubble nucleation on Fe-Ti oxide crystals in high-silica rhyolitic melts. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 68, 3587-3597.
- Gardner, J.E. 2007. Heterogeneous bubble nucleation in highly viscous silicate melts during instantaneous decompression from high pressure. *Chem. Geol.* 236, 1-12.
- Gurioli, L., Houghton, B., Cashman, K., Cioni, R., 2005. Complex changes in eruption dynamics during the 79 AD eruption of Vesuvius. *Bull. Volcanol.* 67, 144-162.
- Harford, C.L., Sparks, R.S.J., Fallick, A.E., 2003. Degassing at the Soufrière Hills Volcano, Montserrat, recorded in matrix glass compositions. *J. Petrol.* 44, 1503-1523.
- Hess, K.U., Dingwell, D.B., 1996. Viscosities of hydrous leucogranitic melts: a non-Arrhenian model. *Am. Mineral.* 81, 297-304.
- Hort, M., Gardner, J.E., 2000. Constraints on degassing of pumice clasts during plinian eruptions based on model calculations. *J. Geophys. Res.* 105, 25981-26001.
- Houghton, B.F., Hobden, B.J., Cashman, K.V., Wilson, C.J.N., Smith, R.T., 2003. Large-scale interaction of lake water and rhyolitic magma during the 1.8 ka Taupo eruption, New Zealand. In: White, J.D.L., Smellie, J.L., Clague, D.A., (ed) *Explosive subaqueous volcanism*. *Geophys. Monograph.* 140, 97-109.
- Hurwitz, S., Navon, O., 1994. Bubble nucleation in rhyolitic melts: experiments at high pressures, temperature, and water content. *Earth Planet Sci Lett* 122, 267-280.
- Kaminsky, E., Jaupart, C., 1997. Expansion and quenching of vesicular magma fragments in Plinian eruptions. *J. Geophys. Res.* 102, 12817-12203.
- Kennedy, B., Spieler, O., Scheu, B., Kueppers, U., Taddeucci, J., Dingwell, D.B., 2005. Conduit implosion during Vulcanian eruptions. *Geology.* 33, 581-584.
- Klug, C., Cashman, K.V., 1991. Effects of vesicle size and shape on the vesicularity of silicic magma fragmentation (abstract). *Eos, Trans. Am. Geophys. Union.* 72, 312.
- Klug, C., Cashman, K.V., 1994. Vesiculation of May 18, 1980, Mount St. Helens magma. *Geology.* 22, 468-472.
- Klug, C., Cashman, K.V., 1996. Permeability development in vesiculating magmas: implications for fragmentation. *Bull. Volcanol.* 58, 87-100.
- Klug, C., Cashman, K.V., Bacon, C.R., 2002. Structure and physical characteristics of pumice from the climatic eruption of Mount Mazama (Crater Lake), Oregon. *Bull. Volcanol.* 64, 486-501.
- Koyaguchi, T., Scheu, B., Mitani, N.K., Melnik, O., 2008. A fragmentation criterion for highly viscous bubbly magmas estimated from shock tube experiments. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 178, 58-71.
- Lantuéjoul, C., 1980. On the estimation of mean values in individual analysis of particles. *Microsc. Acta.* 5, 266-273.
- Larsen, J.F., Denis, M.-H., Gardner, J.E., 2004. Experimental study of bubble coalescence in rhyolitic and phonolitic melts. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 68, 333-344.
- Lensky, N.G., Navon, O., Lyakhovsky, V., 2004. Bubble growth during decompression of magma: experimental and theoretical investigation. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 129, 7-22.
- Liu, Y., Zhang, Y., 2000. Bubble growth in rhyolitic melt. *Earth Planet. Sci. Lett.* 181, 251-264.
- Lyakhovsky, V., Hurwitz, S., Navon, O., 1996. Bubble growth in rhyolitic melts: experimental and numerical investigation. *Bull. Volcanol.* 58, 19-32.
- Mangan, M.T., Cashman, K.V., Newman, S. 1993. Vesiculation of basaltic magma during eruption. *Geology.* 21, 157-160.
- Mangan, M.T., Sisson, T.W. 2000. Delayed, disequilibrium degassing in rhyolite magma: decompression experiments and implications for explosive volcanism. *Earth Planet. Sci. Lett.* 183, 441-455.
- Mangan, M.T., Sisson, T.W., Hankins, W.B., 2004. Decompression experiments identify kinetics controls on explosive silicic eruptions, *Geophys. Res. Lett.* 31, L08605.
- Mason, R.M., Starostin, A.B., Melnik, O.E., Sparks, R.S.J., 2006. From Vulcanian explosions to sustained explosive eruptions: the role of diffusive mass transfer in conduit flow dynamics. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 153, 148-165.
- Massol, H., Koyaguchi T., 2005. The effect of magma flow on nucleation of gas bubbles in a volcanic conduit. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 143, 69-88.

Chapitre III. Analyse texturale en deux dimensions des produits des explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills

- Melnik, O., Sparks, R.S.J., 2002. Modelling of conduit flow dynamics during explosive activity at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (ed) *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999*. Geological Society of London Memoir, vol. 21, 307-317.
- Miles, R., 1974. *Stochastic Geometry, on the elimination of edge effects in planar sampling*. J. Wiley and Sons, New York.
- Mourtada-Bonnefoi, C.C., Laporte, D., 1999. Experimental study of homogeneous bubble nucleation in rhyolitic magmas. *Geophys. Res. Lett.* 26, 3505-3508.
- Mourtada-Bonnefoi, C.C., Laporte, D., 2002. Homogeneous bubble nucleation in rhyolitic magmas: an experimental study of the effect of H₂O and CO₂. *J. Geophys. Res.* 107, 101029.
- Mourtada-Bonnefoi, C.C., Laporte, D., 2004. Kinetics of bubble nucleation in rhyolitic melt: an experimental investigation of the effect of ascent rate. *Earth Planet. Sci. Lett.* 218, 521-237.
- Murphy, M.D., Sparks, R.S.J., Barclay, J., Carroll, M.R., Lejeune, A.M., Brewer, T.S., McDonald, R., Black, S., Young, S., 1998. The role of magma mixing in triggering the current eruption of the Soufrière Hills volcano, Montserrat, West Indies. *Geophys. Res. Lett.* 25, 3433-3436.
- Navon, O., Lyakhovsky, V., 1998. Vesiculation processes in silicic magmas. The physics of explosive volcanic eruptions. *Geol. Soc. Lond. Spec. Pub.* 145, 27-50.
- Orsi, G., Gallo, G., Heiken, H., Wohletz, K., Yu, E., Bonani, G., 1992. A comprehensive study of pumice formation and dispersal: The Cretaio Tephra of Ischia Italy. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 53, 329-354.
- Proussevitch, A.A., Sahagian, D.L., 1996. Dynamics of coupled diffusive and compressive bubble growth in magmatic systems. *J. Geophys. Res.* 101, 17447-17455.
- Sahagian, D.L., Proussevitch, A.A., 1998. 3D particle size distributions from 2D observations: stereology for natural applications. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 84, 173-196.
- Sparks, R.S.J., 1978. The dynamics of bubble formation and growth in magmas: A review and analysis. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 3, 1-37.
- Spieler, O., Dingwell, D.B., Alidibirov, M., 2004a. Magma fragmentation speed: an experimental determination. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 129, 109-123.
- Spieler, O., Kennedy, B., Kueppers, U., Dingwell, D.B., Scheu, B., Taddeucci, J. 2004b. The fragmentation threshold of pyroclastic rocks. *Earth Planet. Sci. Lett.* 226(1-2), 139-148.
- Tait, S., Thomas, R., Gardner, J., Jaupart, C., 1998. Constraints on cooling rates and permeabilities of pumice in an explosive eruption jet from colour and magnetic mineralogy. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 86, 79-91.
- Thomas, R.M.E., Sparks, R.S.J., 1992. Cooling of tephra during fallout from eruption columns. *Bull. Volcanol.* 54, 542-553.
- Thomas, N., Jaupart, C., Vergnolle, S., 1994. On the vesicularity of pumice. *J. Geophys. Res.* 99, 15633-15644.
- Toramaru, A., 1990. Measurement of bubble size distributions in vesiculated rocks with implications for quantitative estimates of eruption processes. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 43, 71-90.
- Toramaru, A., 2006. BND (bubble number density) decompression rate meter for explosive volcanic eruptions. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 154, 303-316.
- Walker, G., 1982. Eruptions of andesitic volcanoes. In: Thorpe RS (ed) *Andesites: orogenic andesites and related rocks*. Wiley, New York. 403-413.
- Westrich, H.R., Eichelberger, J.C., 1994. Gas transport and bubble collapse in rhyolite magma: An experimental approach. *Bull. Volcanol.* 56, 447-458.
- Witham, A.G., Sparks, R.S.J., 1986. Pumice. *Bull. Volcanol.* 48, 209-223.
- Wright, H.M.N., Cashman, K.V., Rosi, M., Cioni, R., 2007. Breadcrust bombs as indicators of Vulcanian eruption dynamics at Guagua Pichincha volcano, Ecuador. *Bull. Volcanol.* 69, 281-300.
- Zhang, Y., Behrens, H., 2000. H₂O diffusion in rhyolitic melts and glasses. *Chem. Geology.* 169, 243-262.

III.4.13 Electronic Supplementary Data

Tableau 9. Vesicularity parameters obtained by He-pycnometry. BCB: breadcrust bombs, PfP: pumices from pyroclastic flows, FP: fallout pumices. See Figure 59b for location of sampling sites. 5 measurements for each He-pycnometry data and 10 for the bulk external volume of each cube.

	Sample# (Sampling Site)		Bulk interior porosity (vol.%)	Connected interior porosity (vol.%)	Isolated interior porosity (vol.%)	Isolated fraction	Rind porosity (vol.%)
(BCB)	BCP1	(2)	32.9±1.5	22.1±2.0	10.8±3.5	0.33	7.5±1.9 ^b
	BCP10	(2)	26.2±1.5	23.7±0.5	2.6±2.0	0.10	2.4±2.0 ^a
	BCP11	(2)	47.9±1.1	41.4±0.5	6.4±1.6	0.13	-
	BCP12	(2)	44.1±1.7	36.6±1.5	7.6±3.2	0.17	5.8±2.0 ^a
	BCP13b	(2)	26.2±0.6	22.7±0.6	3.5±1.2	0.13	9.6±1.8 ^a
	BCP13a	(2)	27.2±2.1	25.9±1.7	1.3±3.8	0.05	9.6±1.8 ^a
	BCP14	(2)	46.8±1.3	39.6±1.5	7.2±2.7	0.15	6.0±1.9 ^a
	BCP15	(2)	48.7±1.1	44.8±0.3	3.8±1.4	0.08	-
	BCP16	(2)	45.9±1.1	43.5±0.4	2.3±1.6	0.05	-
	BCP17	(1)	56.7±1.1	47.1±0.9	9.6±2.0	0.17	24.8±1.6 ^a
	BCP18	(1)	50.5±1.0	42.4±0.3	8.1±1.3	0.16	-
	BCP19	(1)	52.3±1.1	44.8±0.6	7.6±1.6	0.14	-
	BCP20	(1)	47.8±1.1	38.8±0.5	9.0±1.6	0.09	-
	BCP21	(1)	61.9±1.0	54.2±0.8	7.7±1.7	0.12	12.5±1.8 ^a
	BCP22	(1)	65.0±0.9	54.3±0.8	10.6±1.7	0.16	-
	BCP23	(1)	43.5±1.5	35.3±1.2	8.2±2.7	0.19	-
	BCP24	(1)	62.8±0.8	55.1±0.3	7.6±1.0	0.12	9.0±1.9 ^a
	BCP31	(2)	38.1±1.4	30.4±0.7	7.7±2.1	0.20	1.5±2.0 ^a
	BCP32	(2)	40.3±1.5	32.6±1.3	7.6±2.8	0.19	1.1±2.1 ^a
	BCP33	(2)	45.5±1.2	37.0±0.8	8.5±2.0	0.19	5.1±1.9 ^a
	BCP34	(2)	51.2±1.6	44.8±1.4	6.3±3.0	0.12	7.5±1.9 ^a
	BCP35	(2)	49.0±1.0	41.3±1.2	7.8±2.2	0.16	9.6±1.9 ^a
	BCP36	(2)	49.9±1.0	37.2±0.4	12.7±1.4	0.25	18.1±1.7 ^a
	BCP37	(2)	44.8±1.4	38.4±1.0	6.4±2.4	0.14	9.4±1.8 ^a
	BCP38	(2)	47.7±0.8	40.3±1.1	7.4±2.0	0.15	5.8±1.9 ^a
	BCP39	(2)	41.2±1.3	33.3±0.7	7.8±2.0	0.09	5.5±1.9 ^a
	BCP40	(2)	21.9±1.9	19.6±1.3	2.3±3.1	0.10	0.8±2.0 ^a
	BCP41	(2)	37.8±1.3	32.7±0.3	5.1±1.6	0.13	1.8±2.0 ^a
	BCP42	(2)	50.0±1.7	43.4±1.5	6.7±3.3	0.13	5.0±2.0 ^a
	BCP43	(2)	48.8±1.1	42.4±0.5	6.4±1.7	0.13	12.1±1.8 ^a
(PfP)	AMO1a	(1)	56.7±0.6	53.1±0.6	3.5±1.2	0.06	-
	AMO1b	(1)	52.8±0.8	47.8±0.8	5.0±1.6	0.09	-
	AMO29	(1)	58.2±0.2	49.2±0.2	9.0±0.4	0.16	-
	AMO36	(1)	60.7±0.7	54.9±0.8	5.7±1.5	0.09	-
	AMO40	(1)	23.6±1.3	23.7±1.4	-0.1±2.7	0.00	-
	AMO43	(1)	30.6±0.6	31.5±0.6	-0.9±1.3	0.00	-
	AMO100-1	(2)	37.8±1.4	35.1±0.8	2.7±2.2	0.07	-
	AMO100-2	(2)	46.4±1.3	45.6±0.7	0.8±2.0	0.02	-
	AMO101	(2)	67.7±0.7	64.3±0.6	3.4±1.3	0.05	-
	AMO102	(2)	47.9±1.5	45.2±1.1	2.7±2.6	0.06	-
	AMO103	(2)	68.0±0.7	63.5±0.3	4.5±1.0	0.07	-
	AMO104	(2)	59.9±0.5	57.8±0.5	2.0±1.0	0.03	-
	AMO106	(2)	55.5±1.0	48.5±0.5	7.0±1.5	0.13	-
	AMO107	(2)	35.4±1.6	32.0±1.0	3.5±2.5	0.10	-
	AMO108	(2)	67.2±0.8	59.1±0.5	8.1±1.3	0.12	-
	AMO109	(2)	64.9±0.7	59.0±0.3	5.9±1.1	0.09	-
	AMO110	(2)	69.1±0.7	60.7±0.4	8.4±1.1	0.12	-
	AMO111	(1)	61.7±0.9	54.6±0.7	7.1±1.7	0.12	-
	PV3	(1)	75.7±0.3	69.0±0.3	6.7±0.6	0.09	-
(FP)	MTO6-04	(3)	59.1±1.0	51.0±1.3	8.2±2.3	0.14	-
	MTO6-02a	(3)	70.0±0.7	61.8±1.0	8.2±1.7	0.12	-
	MTO6-02b	(3)	59.5±0.9	44.6±1.4	14.9±2.3	0.25	-
	MTO6-3a	(3)	58.1±1.0	56.5±0.8	1.6±1.8	0.03	-
	MTO6-3c	(3)	71.9±1.3	64.2±1.4	7.7±2.7	0.11	-
	MTO6-15a	(3)	43.1±1.3	39.6±0.6	3.5±1.9	0.08	-
	MTO6-15b	(3)	69.3±1.0	66.4±0.9	2.9±1.9	0.04	-

^a Expected to be only isolated porosity.

^b Only isolated porosity (both connected and isolated porosities could be measured).

Tableau 10. Vesicularity parameters obtained by He pycnometry on eight large (> 30 cm) pumice blocks. Four of the pumices have radial gradients in vesicle size evident from visual inspection in the field ('graded': SHV 2, 14, 23, 25); and the other four do not ('homogeneous': SHV 4, 12, 13, 22).

	Sample#	Bulk interior porosity (vol.%)	Connected interior porosity (vol.%)	Isolated interior porosity (vol.%)	Isolated fraction	Position of the sample in the clast
Graded	SHV2-1	52.4±1.0	48.4±0.5	4.0±1.5	0.08	exterior
	SHV2-2	51.6±1.0	48.1±0.5	3.5±1.5	0.07	↓
	SHV2-3	52.9±1.1	49.3±0.7	3.5±1.9	0.07	interior
	SHV2-4	60.3±0.9	57.0±0.4	3.3±1.3	0.05	↑
	SHV2-5	52.7±1.0	47.6±0.3	5.1±1.2	0.10	exterior
	SHV14-1	76.1±0.5	74.5±0.3	1.6±0.8	0.02	exterior
	SHV14-2	77.8±0.5	76.3±0.2	1.5±0.7	0.02	↓
	SHV14-3	78.8±0.5	77.4±0.4	1.4±0.9	0.02	
	SHV14-4	78.0±0.5	76.9±0.3	1.1±0.9	0.01	interior
	SHV14-5	77.3±0.5	76.5±0.2	0.8±0.6	0.01	↑
	SHV14-6	75.8±0.5	74.7±0.2	1.1±0.7	0.01	exterior
	SHV23-1	66.6±0.8	61.4±0.6	5.2±1.4	0.08	exterior
	SHV23-2	67.2±0.8	63.3±0.5	4.0±1.3	0.06	
	SHV23-3	69.1±0.9	66.3±0.7	2.7±1.6	0.04	↓
	SHV23-4	63.3±0.8	60.1±0.4	3.2±1.2	0.05	
	SHV23-5	62.9±0.8	59.5±0.3	3.4±1.0	0.05	interior
	SHV25-1	76.6±0.6	74.9±0.5	1.7±1.1	0.02	exterior
	SHV25-2	71.4±0.7	70.2±0.4	1.2±1.1	0.02	
	SHV25-3	61.7±0.8	60.2±0.3	1.5±1.1	0.02	↓
	SHV25-4	66.7±0.7	65.8±0.4	0.9±1.1	0.01	
	SHV25-5	68.3±0.6	67.4±0.2	0.9±0.8	0.01	interior
Homogeneous	SHV4-1	61.5±0.8	55.2±0.3	6.3±1.1	0.10	exterior
	SHV4-2	60.3±1.5	54.5±1.5	5.9±3.0	0.10	↓
	SHV4-3	60.2±1.2	54.6±1.0	5.6±2.2	0.09	interior
	SHV12-1	63.4±0.8	59.7±0.5	3.7±1.3	0.06	exterior
	SHV12-2	60.8±1.0	58.7±0.6	2.1±1.5	0.03	
	SHV12-3	59.3±0.8	56.9±0.3	2.5±1.1	0.04	↓
	SHV12-4	61.1±0.9	58.3±0.4	2.8±1.3	0.05	interior
	SHV13-1	46.8±1.1	47.4±0.4	-0.6±1.5	0.00	exterior
	SHV13-2	47.3±1.1	48.1±0.5	-0.8±1.7	0.00	
	SHV13-4	47.7±1.2	48.2±0.6	-0.5±1.7	0.00	interior
	SHV13-5	47.7±1.1	48.1±0.3	-0.3±1.4	0.00	exterior
	SHV22-1	64.3±0.7	61.6±0.2	2.7±1.0	0.04	exterior
	SHV22-2	65.0±0.8	63.1±0.3	1.8±1.1	0.03	↓
	SHV22-3	64.6±0.8	63.2±0.4	1.4±1.2	0.02	interior

III.5. Conclusion

L'analyse texturale des vésicules et des cristaux en deux dimensions a permis de mettre en évidence qualitativement et quantitativement la présence de plusieurs populations de vésicules dont les proportions varient en fonction de la texture de l'échantillon. Nous avons aussi montré que la texture de chaque échantillon est en grande partie liée à la position de celui-ci dans le conduit avant chaque explosion vulcanienne. Les populations de vésicules et leurs caractéristiques mises en évidence par ce travail sont :

Une population de grandes vésicules ($>$ plusieurs centaines de μm) présente dans tous les échantillons et qui est liée à la fracturation de phénocristaux d'amphiboles. Ces vésicules constituent l'ensemble des grandes vésicules présentes dans l'intérieur des bombes en croûte de pain et $\sim 15\%$ des grandes vésicules présentes dans les scories et les ponces. Ces grandes vésicules sont de forme angulaire et sont présentes entre les fragments de cristaux. Elles sont interprétées comme étant syn-éruptives et post-fragmentation dans les bombes.

Une population de grandes vésicules connectées ($>$ plusieurs centaines de μm), donnant l'impression en 2D d'être en fait des chenaux de vésicules présents entre les vésicules de plus petite taille. Ces vésicules constituent l'essentiel de la population de grandes vésicules présentes dans les ponces. Elles sont interprétées comme étant pré-explosives, ayant été résorbées dans les bombes en croûte de pain, expliquant les zones totalement denses visibles dans les croûtes.

Une population de petites vésicules (de quelques microns à quelques dizaines de microns) en grande partie isolées, présentes dans tous les échantillons. Ces vésicules sont souvent sous la forme d'amas situés entre les vésicules plus grandes. Elles sont interprétées comme étant syn-éruptives en raison de leur présence à l'intérieur des bombes en croûte de pain qui sont issus d'un magma initialement totalement dense et de leurs caractéristiques similaires (isolées, rondes...) dans les ponces. Ces petites vésicules ont nucléé de manière hétérogène sur des cristaux de magnétite. Elles ont grandi principalement par décompression.

Une population de vésicules de taille intermédiaire (de quelques dizaines à quelques centaines de μm), quasiment toutes connectées, et présentes surtout dans les échantillons de scories et de ponces. Ces vésicules sont interprétées comme étant le résultat de la croissance et de la coalescence des petites vésicules citées précédemment. Elles sont donc aussi nécessairement syn-explosives. L'abondance de cette population dépend du délai entre la nucléation des petites vésicules (décompression) et la trempe de l'échantillon.

Les résultats issus de cette étude texturale en deux dimensions illustrent le fait qu'une partie non négligeable de la vésicularité finale des produits des explosions vulcaniennes est syn-explosive. La porosité pré-éruptive peut atteindre ~55% dans la partie homogène du conduit, ce qui est confirmé quantitativement par la présence (uniquement dans les ponces) d'amphiboles boudinées de façon uniaxiale. Nous avons aussi montré que le processus de vésiculation dans les ponces est majoritairement confiné au conduit, en raison de la similarité de textures entre celles provenant de coulées pyroclastiques et celles issues des retombées, malgré une histoire thermique différente après la sortie de l'évent. Les taux de décompression impliqués ($0,3$ à $6,5 \text{ MPa s}^{-1}$) peuvent s'expliquer par une simple décompression liée à la fragmentation et à l'expulsion du magma sus-jacent et sont compatibles avec les taux de décompression obtenus par les modélisations numériques.

Les processus de nucléation et de croissance des bulles semblent bien contraints de façon qualitative mais aussi absolue grâce aux modèles de Toramaru (2006) et Lensky et al. (2004), respectivement. En revanche, s'il existe des preuves visuelles (images MEB notamment) que la coalescence joue un rôle fondamental dans l'évolution de la vésicularité et donc dans la détermination de la texture de l'échantillon, il est assez difficile d'étudier ce processus en deux dimensions uniquement. Cependant, ce processus demande à être étudié de façon plus précise étant donné qu'il contrôle directement la perméabilité de l'échantillon via les constriction existantes entre les vésicules.

C'est en partie pour cette raison que quelques textures ont été étudiées par microtomographie à rayons X, permettant une visualisation et une quantification directement en trois dimensions du système. Cette étude en 3D est détaillée dans le chapitre suivant.

IV. Analyse texturale en trois dimensions

IV.1. Introduction

L'analyse texturale que nous avons menée en deux dimensions a permis de préciser les processus de vésiculation se produisant dans le conduit lors d'une explosion vulcanienne. Elle a notamment permis de mettre en évidence le rôle important de la nucléation hétérogène. Cette analyse en 2D et les calculs qui lui sont associés suggèrent aussi que la croissance des bulles syn-explosives s'est faite majoritairement par décompression. Cependant, la coalescence qui est un processus crucial lors des éruptions explosives (acquisition ou non d'une perméabilité facilitant le dégazage), ne peut être étudiée de façon approfondie en 2D et requiert de travailler avec une vision en 3D du système. De même, la forme parfois complexe de certaines vésicules ne peut être étudiée en détails que via une analyse en trois dimensions. Les méthodes de l'analyse texturale en 3D sont détaillées dans les paragraphes suivants. Les résultats et interprétations figurent sous forme d'un article soumis pour publication à Bulletin of Volcanology.

La micro-analyse en 3D permet d'ajouter une dimension à l'analyse texturale mais aussi de s'affranchir de plusieurs problèmes et hypothèses inhérents à l'analyse en 2D :

En 2D, certaines des grandes vésicules interprétées comme étant des fractures liées aux cristaux sont peut-être des vésicules artificielles, créées par l'arrachement d'un fragment de cristal lors de la fabrication de la lame mince. L'analyse en 3D permet de visualiser l'intérieur des échantillons de façon non-destructive et donc de confirmer ou d'infirmer l'existence de ces fractures.

Lors de l'analyse en 2D il est indispensable de faire une hypothèse sur la forme des vésicules et des cristaux, afin de convertir les distributions de surface et de densité numérique par unité de surface en distributions de volume et de densité numérique par unité de volume, respectivement. L'analyse en 3D permet de s'affranchir de ces aprioris, le calcul d'un diamètre équivalent étant ici simplement utilisé pour classer les vésicules.

Même si les échantillons sont choisis de sorte que leurs vésicules soient isotropes et distribuées de façon homogène, il est possible qu'il existe une légère orientation préférentielle des vésicules, invisible en 2D si la lame mince est réalisée perpendiculairement à la direction de l'allongement. S'il existe réellement une orientation préférentielle, même légère, elle sera analysable en 3D.

IV.2. Acquisition

IV.2.1 Principe général

La microtomographie à rayons X est une technique non-destructive d'analyse en trois dimensions, fournissant une image volumique de la répartition du coefficient d'absorption linéaire des rayons X (μ). Ce coefficient est une fonction du nombre atomique, de la densité du matériau traversé et de l'énergie des rayons X utilisés (Rivers et al 1999 ; Sutton et al 2002). En conséquence, sur les images en niveaux de gris produites, les vésicules (vide) apparaissent en général en gris foncé, le verre, les pyroxènes et les plagioclases en gris clair et les oxydes, plus denses, en blanc. Lorsque les constituants de l'échantillon considéré présentent des différences marquées de valeur de μ (e.g. une ponce contenant à la fois une phase solide et du vide), il est possible d'extraire, par segmentation, une image 3D de la distribution spatiale des différents constituants.

Les premières utilisations de la microtomographie pour l'étude des milieux poreux datent du début des années 1990 et le nombre de projets mettant en œuvre cette technique n'a cessé de croître depuis, dans tous les domaines. Si les caractéristiques techniques et pratiques des différents appareillages utilisés varient, le principe physique de la microtomographie à rayons X reste le même. L'échantillon (de préférence cylindrique, pour des raisons pratiques), est placé perpendiculairement entre une source de rayons X et un détecteur, sur un support permettant sa rotation (Figure 74). Une radiographie de l'échantillon est effectuée, puis celui-ci est pivoté de quelques dixièmes de degrés, puis une autre radiographie est effectuée et ainsi de suite jusqu'à ce que l'échantillon ait parcouru au moins un demi-tour, voire un tour complet, selon l'appareil.

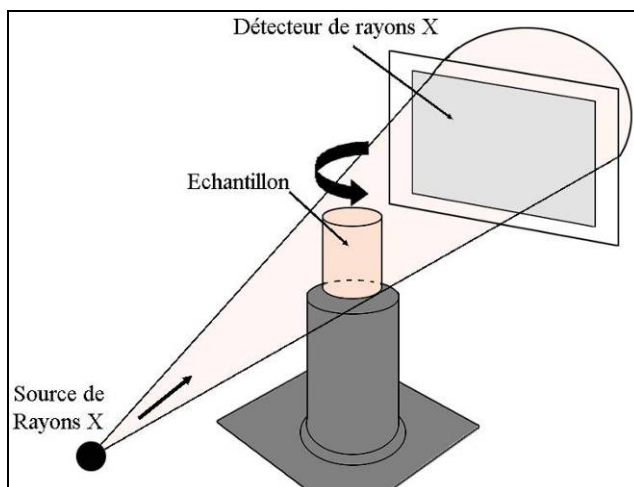


Figure 74. Schéma simplifié du principe de la microtomographie à rayons X. Un faisceau de rayons X, plus ou moins puissant, traverse l'échantillon puis est collecté via le détecteur. La variation de valeur du coefficient d'absorption linéaire des rayons X d'un type de matériau à l'autre (e.g. verre silicaté et vide) permet d'obtenir une image 3D de la distribution spatiale des différents constituants.

Chaque radiographie de l'échantillon est une intégration sur son épaisseur de toutes les valeurs des coefficients d'absorption des différents constituants (Figure 75-1). En utilisant

l'ensemble des radiographies de l'échantillon sur 180 ou 360° (Figure 75-2) et à l'aide de logiciels de reconstruction, il est possible de transformer ces radiographies en une série de plans parallèles, régulièrement espacés, chacun équivalent à une cartographie en niveaux de gris des différents constituants de l'échantillon (Figure 75-3). L'échelle du pixel (résolution), sur ces images en niveaux de gris, dépend en grande partie de l'intensité du faisceau de rayons X, mais aussi d'une combinaison entre des paramètres tels que les distances source/échantillon et échantillon/détecteur, du nombre d'acquisitions (valeur de l'incrément de rotation) ou encore de la sensibilité du détecteur. Les plans sont espacés les uns des autres d'une distance égale à la taille du pixel sur chaque image, permettant d'avoir une résolution identique dans les trois directions de l'espace.

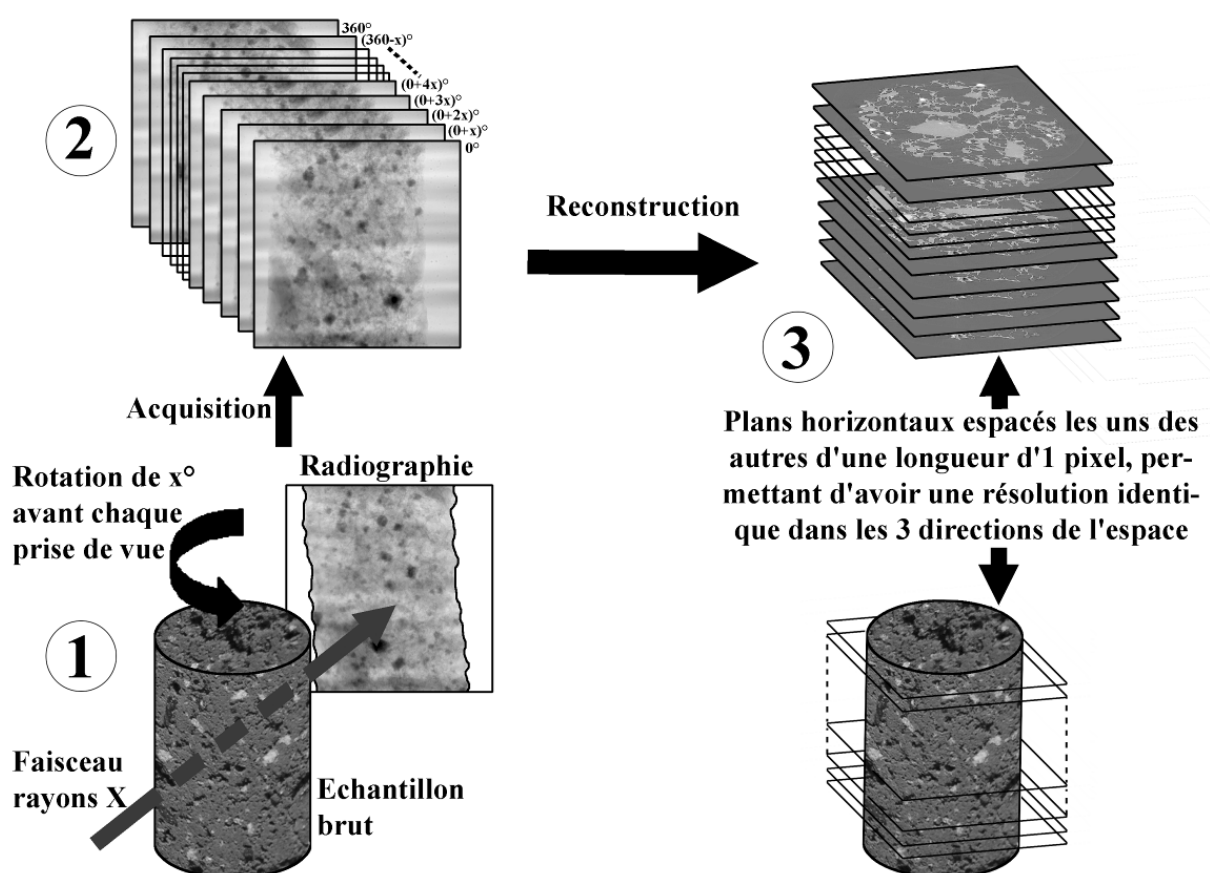


Figure 75. Schéma simplifié des principales étapes constituant l'acquisition des images microtomographiques, quel que soit l'appareil considéré.

Etant donnée la large gamme de tailles de vésicules observées dans les produits des explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills (de quelques μm à plusieurs mm), et comme nous l'avons fait pour l'analyse texturale en deux dimensions, nous avons été contraints d'acquérir trois séries d'images microtomographiques sur chaque échantillon, avec trois résolutions spatiales différentes. Deux jeux d'images ont été acquis à l'aide de

microtomographes dits « de table » et la troisième série d'images a été acquise sur un microtomographe installé sur une ligne d'un synchrotron.

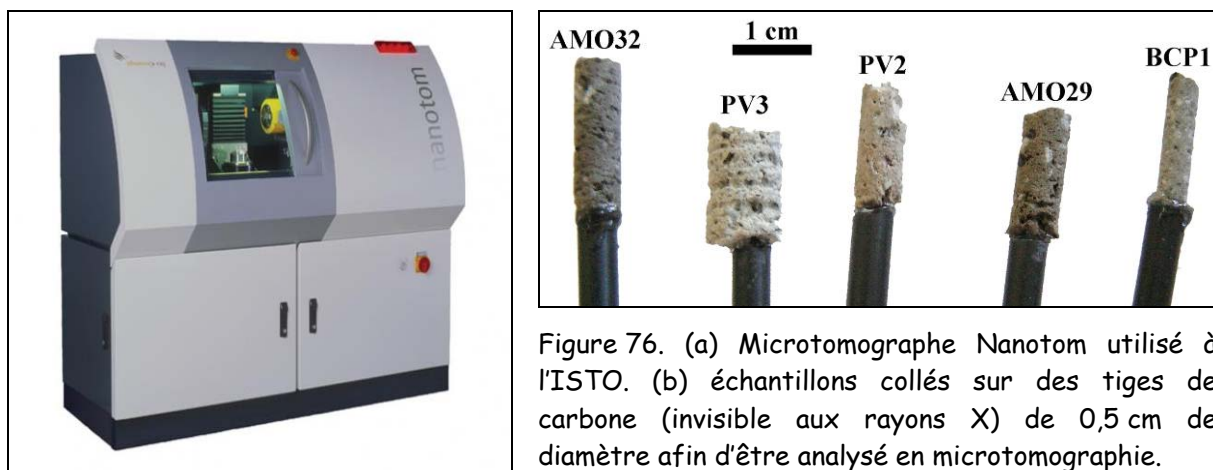
IV.2.1.a Images IPROS

Un premier jeu d'images a été acquis à l'Institut de Prévention et de Recherche sur l'Ostéoporose (IPROS, Orléans), à l'aide d'un microtomographe Skyscan 1072. Un parallélépipède rectangle de ~1 cm de côté ou un cylindre de 8 mm de diamètre a été découpé dans chacun des échantillons, afin d'être analysé. La source de rayons X utilisée avait une tension de 80 kV et une intensité de 100 μ A et l'incrément de rotation de l'échantillon entre chaque radiographie était de 0,45°, la rotation se faisant sur 180° au total. Les projections ont ensuite été traitées à l'aide du logiciel NRecon, permettant d'obtenir une série d'environ 1 000 images en niveaux de gris de 1024×1024 pixels². La résolution de ces images est de 17,3611 μ m px⁻¹ dans toutes les directions.

En considérant qu'un objet (vésicule ou cristal) doit être représenté par un volume d'au moins 50 voxels (= 50 px³) pour être distingué du bruit de l'image, alors les images IPROS permettent d'analyser les objets d'au moins ~80 μ m de diamètre. Si à l'inverse on considère que l'objet ne doit pas excéder 1/10^{ème} de la longueur du côté du cube analysé (soit 1/1 000^{ème} du volume total), cette série d'images permet de rendre compte d'objets jusqu'à ~900 μ m de diamètre.

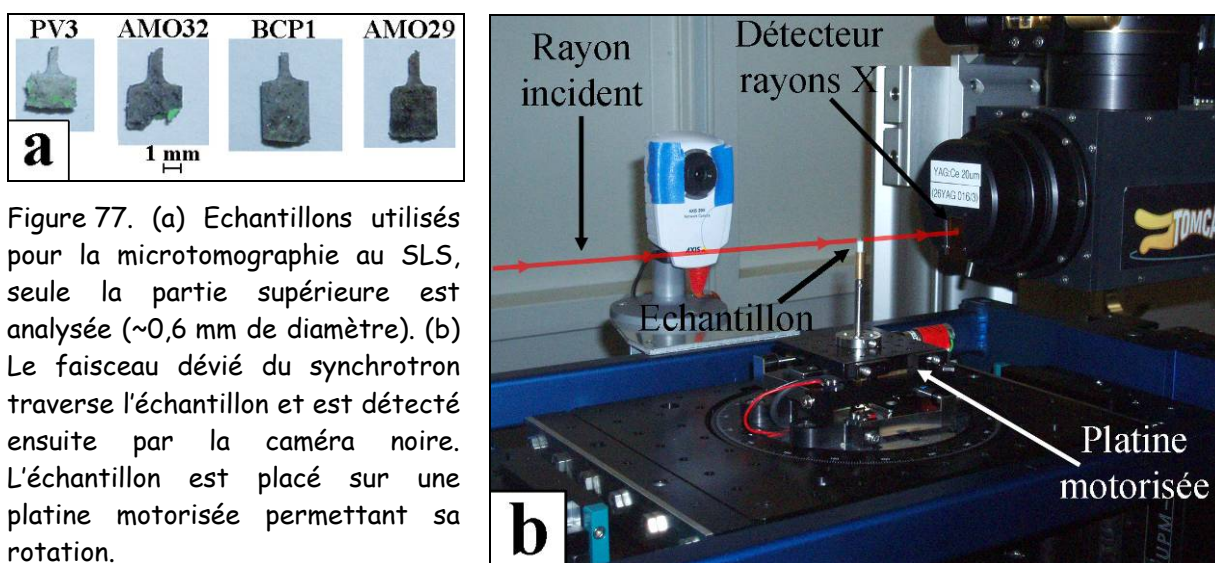
IV.2.1.b Images ISTO

Une deuxième série d'images a été acquise à l'Institut des Sciences de la Terre d'Orléans (ISTO), à l'aide d'un microtomographe Nanotom fabriqué par Phoenix|x-ray (Figure 76a). Un cylindre de 4 à 8 mm de diamètre a été découpé dans chaque échantillon (Figure 76b) et placé entre la source de rayons X et le détecteur. La source utilisée dans ce cas avait une tension de 80 kV et une intensité de 90 μ A, et le pas de rotation était de 0,28°, l'échantillon effectuant un tour complet sur lui-même. Les projections ont ensuite été converties en une série de plans de 1132×1132 px² avec une résolution variant de 4 à 5,4 μ m px⁻¹ selon l'échantillon considéré. En conservant les mêmes critères de détectabilité et de représentativité que pour la série d'images IPROS, les images ISTO permettent d'analyser les vésicules de ~18 μ m à ~400 μ m de diamètre selon l'échantillon.



IV.2.1.c Images SLS

Le dernier jeu de données permet d'analyser les vésicules les plus petites et a été obtenu sur la ligne TOMographic Microscopy and Coherent rAdiology experimenTs (TOMCAT) du synchrotron Swiss Light Source (SLS, Villingen, Suisse). Les échantillons ont dû être coupés en cylindres de 0,6 mm de diamètre environ (Figure 77a), ce qui n'a pas toujours été évident sur des échantillons très vésiculés (parfois plus de 75%) dont certaines des vésicules mesurent plus de 1 mm de diamètre. Ces cylindres ont été réalisés au tour numérique à l'ISTO. La source de rayons X du SLS (Figure 77b) est beaucoup plus puissante que pour les microtomographes précédents, permettant d'augmenter la résolution jusqu'à $0,37 \mu\text{m vx}^{-1}$ et donc d'analyser les vésicules de ~ 2 à plus de $35 \mu\text{m}$ de diamètre (en gardant les mêmes critères). Les données consistent en 2048 images de chacune $2048 \times 2048 \text{ px}^2$.



Les images brutes initiales sont donc du même type, quelle que soit l'acquisition réalisée. Il s'agit d'images en niveaux de gris pour lesquelles la valeur de chaque pixel dépend

de la nature du matériau (vide, verre siliceux, amphibole, oxyde...). Les possibilités de traitement de ces images sont très nombreuses. Dans cette étude, toutes les séries d'images ont été traitées de la même façon, d'abord d'un point de vue qualitatif puis quantitativement.

IV.2.2 Analyse qualitative

Dans un premier temps, toutes les images d'un jeu de données ont été ouvertes en tant que séquence d'images à l'aide du programme ImageJ. En faisant défiler plan par plan les images, et en se déplaçant ainsi virtuellement dans la pile qu'elles forment, il est possible d'obtenir des informations qualitatives sur l'agencement des vésicules entre elles, mais aussi avec les cristaux. Les images ont aussi été observées en représentation 3D, à l'aide des logiciels VGStudio et ParaView, permettant de détecter d'autres informations difficilement discernables en n'utilisant qu'ImageJ. Cependant, en raison de la difficulté à visualiser les relations spatiales entre les vésicules avec l'ensemble des images d'une série en raison du très grand nombre de vésicules et de leur proximité spatiale, les données qualitatives sont souvent issues de l'observation d'un sous-échantillonnage des données. Le fait d'avoir des données à trois résolutions différentes permet d'obtenir des informations à la fois sur les grandes vésicules ($>$ plusieurs centaines de μm) issues par exemple de la fracturation des cristaux (série IPROS, cf. Giachetti et al. à soumettre, Figure 80a), sur les vésicules de taille moyenne et leur relations avec les plus grandes (~ 100 à $500 \mu\text{m}$, Figure 80b) et sur les vésicules les plus petites, de l'ordre de quelques microns (Figure 80c).

IV.2.3 Analyse quantitative

IV.2.3.a Images utilisées

En plus des nombreuses informations qualitatives qu'elles fournissent, les images microtomographiques peuvent être utilisées à des fins quantitatives sans avoir à requérir aux relations stéréologiques utilisées lors de l'analyse texturale en deux dimensions. Les données microtomographiques permettent d'obtenir notamment la densité numérique de vésicules et la distribution de cette densité en fonction de la taille des vésicules, mais aussi leur distribution volumique, certaines caractéristiques concernant leur forme (sphéricité, allongement préférentiel) ou encore leur répartition spatiale (fabrique éventuelle).

Comme pour les analyses qualitatives et pour les mêmes raisons invoquées précédemment, seule une partie de l'ensemble des images microtomographiques a été utilisée pour en extraire des données quantitatives. Des cubes de 300^3 à 400^3 px^3 ont été utilisés pour l'analyse quantitative. Pour cela, l'entièreté des images a été chargée dans ImageJ, puis une

partie jugée représentative de la texture générale de l'échantillon a été repérée et dans laquelle un cube de 400 pixels de côté a été découpé. Pour les images des séries SLS, étant-donnée la haute résolution et la très haute qualité des images obtenues, nous avons dans un premier temps découpé un cube de 800 pixels de côté, que nous avons ensuite sous-échantillonné en un cube de 400 pixels, en veillant à ne pas faire artificiellement disparaître trop de parois entre les vésicules. Cela diminue certes la résolution d'un facteur 2 ($0,74 \mu\text{m px}^{-1}$ au lieu de $0,37 \mu\text{m px}^{-1}$), mais permet aussi de prendre en compte beaucoup plus de vésicules, sans diminuer pour autant la qualité des images analysées.

Certaines parois très fines n'apparaissent pas sur les images microtomographiques brutes en raison de la résolution parfois trop faible. Il faut donc reconstruire ces parois virtuellement, avant de traiter les images et compter les vésicules. Si cette opération est laborieuse mais réalisable en deux dimensions (cf. Chapitre 3), il est impossible de retracer manuellement chaque paroi de vésicule en 3D, car cela signifierait retracer chaque paroi sur chacun des plans constituant la série d'images analysées, sans décaler le tracé de la paroi d'un pixel entre deux plans, car cela fausserait la reconstruction des vésicules en 3D et donc la distribution. Cette opération a été réalisée semi-automatiquement, à l'aide du programme 3DMA-Rock.

IV.2.3.b Reconstruction des parois : 3DMA-Rock

3DMA-Rock est un code numérique dont le but est de fournir des données statistiques de la distribution géométrique d'une phase à partir d'images en 2D ou en 3D, après avoir individualisé chaque pore ou chaque grain via la construction de parois (Lindquist 1999 ; Lindquist et Venkatarangan 1999 ; Lindquist et al. 2000 ; Shin et al. 2005 ; Prodanovic et al. 2007). Ce programme a par exemple été utilisé pour obtenir les distributions de taille de grains de sable, de réseaux de fibres de cellulose ou encore pour déterminer la structure d'un groupe de neurones. Les principales étapes effectuées par 3DMA-Rock sont expliquées en détails dans cette partie à l'aide d'un cube de 400 pixels de côté, découpé dans les images microtomographiques de la ponce PV3, réalisées au SLS. Ces étapes sont visualisées à la fois à l'aide d'une vue en 2D, correspondant à un plan choisi arbitrairement au sein du cube (Figure 78). Une visualisation en 3D de ce même cube est disponible en Figure 81 présente dans Giachetti et al. (à soumettre). Les deux types de visualisation ont été réalisés à l'aide du logiciel VGStudio. Le programme procède par étapes à partir des images brutes, afin de dresser au final des listes des caractéristiques géométriques, à la fois des vésicules préalablement individualisées, mais aussi des parois construites.

Les données brutes sont dans notre cas les images microtomographiques en niveaux de gris (Figure 78, 81a). Comme pour l'étude texturale en deux dimensions, la première étape de l'analyse quantitative des images microtomographiques est la segmentation, c'est-à-dire le passage d'images en niveaux de gris à des images binaires. 3DMA-Rock possède une option permettant de segmenter les images en utilisant en partie une interpolation de type krigeage. Après avoir défini une limite de niveau de gris au-dessous de laquelle chaque voxel est considéré comme étant une vésicule, et une autre au-dessus de laquelle chaque voxel est considéré comme appartenant à la phase solide (cristal ou verre), l'ensemble des voxels ayant une valeur comprise entre ces deux valeurs limites est attribué à l'une ou l'autre des deux phases, via la méthode d'interpolation krigeage. Les deux valeurs limites ont été déterminées à l'aide d'ImageJ, en se déplaçant virtuellement dans le cube d'images et en faisant varier la valeur de segmentation, afin de trouver le meilleur compromis entre la perte d'information et l'augmentation du bruit de l'image. Il est à noter qu'il existe une option dans 3DMA-Rock permettant de débarrasser en partie l'image des voxels mal interprétés par l'interpolation, même si au final il en subsiste toujours quelques uns. Une fois les images segmentées (Figure 78, 81b), elles peuvent être visualisées en 3D, permettant d'obtenir quelques informations sur l'agencement relatif des vésicules entre elles et avec les cristaux (Figure 78, 81b).

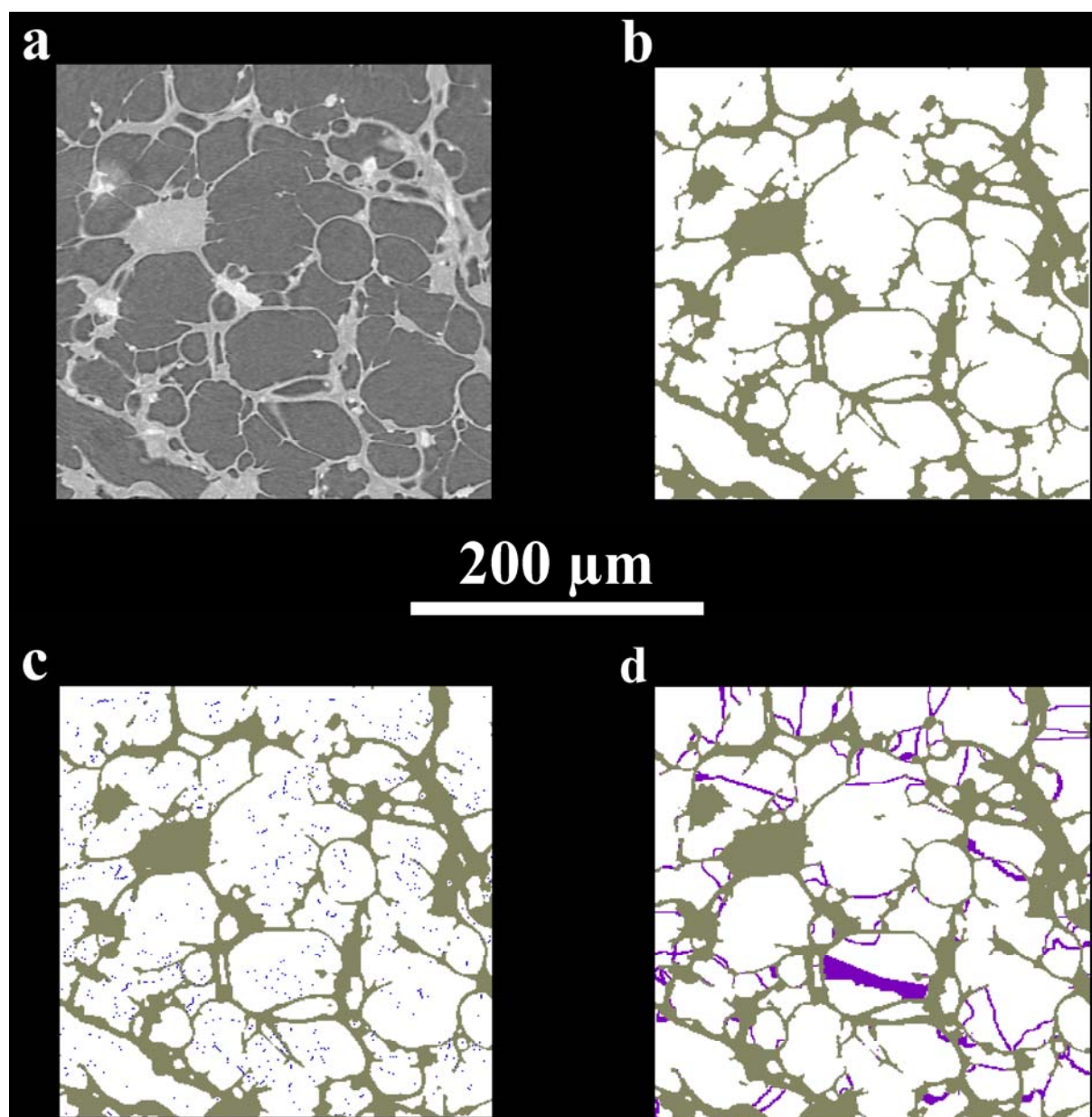


Figure 78. Principales étapes retraçant le fonctionnement de 3DMA-Rock visualisées sur un des plans du cube de 400^3 px^3 de la série d'images SLS de l'échantillon PV3. (a) Images brutes en niveaux de gris, les vésicules sont en gris foncé et la phase solide en gris clair, les oxydes apparaissant en blanc. (b) Après segmentation, les vésicules étant ici représentées en blanc et la phase solide en marron. (c) Après construction du medial axis qui apparaît sous forme de points bleus. (d) Après reconstruction des parois qui sont figurées en violet.

Le programme construit ensuite par érosions progressives une représentation 1D du squelette du réseau de vésicules de l'échantillon, appelée « medial axis » (Lee et al. 1994 ; Lindquist et al. 1996). Concrètement, le medial axis est un ensemble de chaînes de 1 voxel de diamètre chacune, qui s'entrecroisent dans l'espace (Figure 81c), avec de nombreux points de croisement et de très nombreuses ramifications. En 2D, le medial axis apparaît sous forme de points au milieu des vésicules (Figure 78c), les chaînes de voxels étant intersectées par le plan constituant l'image. S'il n'existe dans 3DMA-Rock qu'une seule façon de construire le

medial axis, il y a en revanche de nombreuses options pour « nettoyer » celui-ci. En effet, le bruit subsistant sur l'image provoque l'apparition de nombreuses ramifications, qui sont en fait des artefacts. Etant donné que le medial axis est le support sur lequel vont être ensuite construites les parois, cette étape de nettoyage est cruciale et va avoir une influence sur le nombre de parois érigées et donc sur la distribution de taille de vésicules.

Le programme construit ensuite des parois entre certaines vésicules (Figure 78d, 81d), en dilatant virtuellement et de manière progressive le medial axis, de façon radiale et perpendiculairement à sa longueur. La construction ou non d'une paroi, ainsi que l'endroit où celle-ci est construite sur le medial axis sont contrôlés par l'utilisateur de façon indirecte, via des options disponibles au cours de cette étape. La distribution de tailles des vésicules varie donc aussi théoriquement selon les valeurs rentrées par l'utilisateur dans ces différentes options.

Une fois cette dernière étape effectuée, le programme permet d'obtenir de nombreux fichiers de sortie, répertoriant toutes les étapes effectuées, de la segmentation à la construction des parois. Nous avons utilisé un fichier de sortie en format texte, qui répertorie à la fois toutes les vésicules individualisées avec leur volume en pixels³, ainsi que toutes les parois construites avec leur diamètre en pixels² et le couple de vésicules qu'elles séparent. L'ajout d'une option dans ce programme nous a aussi permis d'obtenir une série d'images en format TIF sur lesquelles sont différenciés les vésicules, le solide (cristaux + verre) et les parois construites par le programme. Ces images nous permettent notamment de vérifier que le programme retrouve la plupart des parois perdues lors de l'acquisition et, si ce n'est pas le cas ou qu'au contraire il en retrace trop, d'ajuster un ou plusieurs paramètres disponibles dans les différentes étapes du programme. Nous avons montré que même en faisant varier fortement les différents paramètres ajustables du programme, les distributions de vésicules obtenues sont très similaires et les données sont très comparables, y compris de manière absolue (cf. Figure 83 de Giachetti et al., à soumettre).

IV.2.3.c Analyse des cristaux et des oxydes

Comme pour l'analyse en deux dimensions, l'analyse des cristaux est indispensable à la construction d'une distribution de tailles des vésicules, afin de corriger l'effet de leur présence, surtout pour les phénocristaux. Il n'y a pas besoin de reconstruire les parois pour analyser les cristaux et il est aisé d'obtenir leurs caractéristiques géométriques (volume notamment) à l'aide uniquement du logiciel ImageJ. Néanmoins, comme en 2D, il est indispensable de binariser les images avant traitement par ImageJ. S'il a été laborieux mais

possible de faire ressortir les plagioclases et les pyroxènes sur les images IPROS et ISTO, il a en revanche été quasiment impossible de les distinguer du verre résiduel sur les images SLS. Les distributions de cristaux présentées par la suite sont donc valables jusqu'à des tailles minimales de $\sim 35 \mu\text{m}$.

Dans l'optique de comparer les densités numériques des vésicules avec celles des oxydes afin de mesurer l'étendue de la nucléation hétérogène, nous avons néanmoins effectué une distribution de taille des oxydes en 3D. Il a été assez facile de les distinguer du reste de l'image car ils apparaissent en blanc sur celles-ci, les distinguant des autres cristaux. La distribution de taille des oxydes a été construite de la même façon que celle des vésicules (cf. paragraphe suivant), et est valable jusqu'à une taille minimale de $2 \mu\text{m}$ environ. La distribution de taille des oxydes a été utilisée pour compléter celle des cristaux aux petites tailles (2 à $35 \mu\text{m}$).

IV.2.3.d Construction des distributions de taille de cristaux, de vésicules et d'oxydes

Suite au traitement des images avec le logiciel 3DMA-Rock afin de reconstruire les parois, la construction des distributions de tailles de vésicules s'est faite en deux étapes, similaires aux étapes 2 et 3 utilisées pour construire les distributions de taille en deux dimensions.

- Etape 1. Distribution à l'échelle du stack d'images

L'inconvénient majeur de 3DMA-Rock est qu'il ne fournit pas, à notre connaissance, la liste des vésicules qui sont naturellement isolées dans l'échantillon, et ne donne que l'ensemble des vésicules qu'il a individualisées, via la construction des parois. Nous avons donc utilisé les images TIF créées par 3DMA-Rock, sur lesquelles figurent les parois construites, et nous les avons analysées à l'aide d'ImageJ. Ce programme permet, comme en 2D de produire une liste de toutes les vésicules individualisées en 3D présentes dans une série d'images et ainsi d'avoir la liste de toutes les vésicules, à la fois celles individualisées par 3DMA-Rock, mais aussi celles naturellement isolées. La différence entre les deux listes de vésicules permet d'obtenir séparément les vésicules isolées et les vésicules connectées.

A partir des listes de volumes de vésicules et de cristaux fournies par ImageJ et 3DMA-Rock, nous avons procédé comme pour l'analyse en 2D (Chapitre 3), en calculant d'abord le volume V_{3D} en μm^3 de chaque vésicule à partir de son volume V_p en px^3 et de l'échelle e_{3D} en $\mu\text{m px}^{-1}$ (équ. [47]), puis en calculant un diamètre équivalent D_{3D} pour chaque objet à partir de V_{3D} (équ. [48]).

$$V_{3D} = V_p \times e_{3D}^3 \quad [47]$$

$$D_{3D} = 2 \sqrt[3]{\frac{3V}{4\pi}} \quad [48]$$

Ensuite, exactement comme pour l'analyse texturale en 2D, les distributions du volume et de la densité numérique des différents objets en fonction de leur taille ont été réalisées en fonction du diamètre équivalent (D_{3D}), en regroupant les vésicules par classes de tailles. Les classes de tailles utilisées sont les mêmes que pour la 2D, de $\text{Log}(D_{3D}) = 0$ à $\text{Log}(D_{3D}) = 4$ par pas de 0,1, soit des classes logarithmiques espacées de $10^{0,1}$. Contrairement à la 2D, aucune correction n'a été appliquée pour les objets coupés par le bord du cube.

Comme pour la méthodologie en 2D, cette étape permet d'obtenir les distributions de la densité numérique (N_v), et du volume des différents objets (vésicules isolées, vésicules connectées, cristaux et oxydes), en fonction du diamètre équivalent, à l'échelle d'un grossissement. Elle permet aussi de vérifier qu'il existe bien des gammes de tailles où les données de plusieurs grossissements se recouvrent (Figure 85a ; Giachetti et al., à soumettre). Ce recouvrement est indispensable pour construire les distributions à l'échelle de l'échantillon entier, comme expliqué par la suite.

- Etape 2. Distributions à l'échelle de l'échantillon

Toujours comme pour l'analyse en 2D, nous avons couplé les données des trois grossissements afin d'établir une distribution de taille à l'échelle de l'échantillon. La méthodologie de recouvrement est exactement la même qu'en 2D, d'abord nous avons défini les domaines de validité pour chaque grossissement (définition de L_{inf} et L_{sup}), puis nous avons calculé et utilisé les mêmes coefficients R_{3D} que pour la 2D, excepté qu'ils mettent en jeu des volumes et non plus des surfaces :

$$R_{3D} = \frac{V_{macro} - V_{Obj > L_{sup}}}{V_X - V_{ObjX > L_{sup}}} \quad [49]$$

Avec V_{Macro} qui est le volume des images IPROS, V_X qui est le volume des images du grossissement X, $V_{Obj > L_{sup}}$ qui est le volume normalisé à V_{macro} de tous les objets plus grands que L_{sup} présents sur les grossissements plus faibles que X, et $V_{ObjX > L_{sup}}$ qui est le volume des objets présents dans X et plus grands que L_{sup} . Cette normalisation se fait en commençant par

le zoom le plus faible (images IPROS) et s'applique en descendant vers les zooms les plus forts, jusqu'au grossissement SLS.

En ne conservant, pour un grossissement donné, que les valeurs situées entre ses limites L_{inf} et L_{sup} et en normalisant toute la distribution ainsi obtenue à 1, on obtient à l'échelle de l'échantillon, la fraction volumique qu'occupe chaque classe de tailles de cristaux, de vésicules et d'oxydes. En appliquant les mêmes facteurs R_{3D} et la même normalisation aux distributions de densités numériques (N_v), on obtient la densité numérique de cristaux, de vésicules et d'oxydes pour chaque classe de tailles à l'échelle de l'échantillon. Comme pour la méthodologie en 2D, l'intégration des différentes distributions sur l'ensemble des classes de tailles utilisées permet d'obtenir à la fois la cristallinité ou la vésicularité (en % volumique), mais aussi les densités numériques de cristaux, de vésicules et d'oxydes par unité de volume.

IV.2.3.e Construction des distributions de tailles de constriction

A l'aide de la liste des parois que 3DMA-Rock a construites pour séparer les vésicules, nous avons réalisé une distribution de taille de parois entre les vésicules, c'est-à-dire une distribution de tailles des constriction entre les vésicules. Cette distribution de tailles des constriction a un intérêt scientifique important car c'est elle qui contrôle la perméabilité de l'échantillon et non directement la distribution de tailles des vésicules, car les constriction jouent le rôle de résistance à la progression du gaz.

IV.2.3.f Distribution de la sphéricité

Nous avons aussi calculé la sphéricité de chaque vésicule afin de déterminer si, comme les résultats de l'analyse en 2D le montrent, la complexité de la forme des vésicules augmente avec leur taille. Un code Matlab a été écrit afin de calculer cette sphéricité en 3D car aucun des programmes disponibles ne dispose de cette option. Le code écrit permet de calculer pour chaque bulle supérieure à 50 pixels³ et dont le volume n'excède pas 1% du volume de l'image, à la fois son volume V_p en pixels³ ainsi que sa surface extérieure S_p en pixels² à l'aide de la fonction « isosurface » notamment (Figure 79).

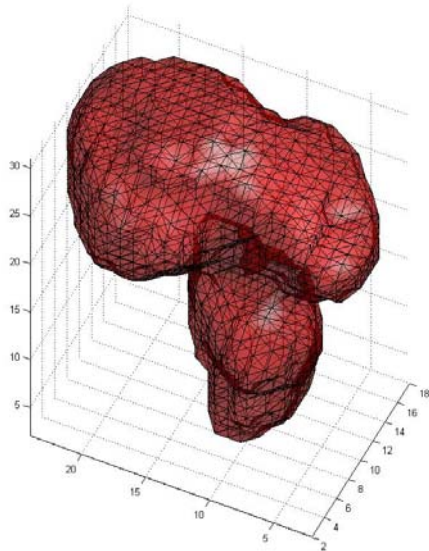


Figure 79. Calcul de la sphéricité d'une vésicule en 3D à l'aide d'un programme Matlab écrit pour l'occasion. Le programme calcule dans un premier temps le volume en pixels³ de la bulle puis calcule sa surface externe en la discrétisant en triangles et en additionnant l'ensemble des surfaces de ces triangles.

Ces deux données permettent de calculer la sphéricité (Ψ) définie par Wadell (1935) comme étant le rapport entre la surface d'une sphère de volume égal à celui de la particule considérée (ici, une vésicule) et la surface externe réelle de la particule. La sphéricité a été calculée à l'aide de la formule :

$$\Psi = \frac{\pi^{1/3} (6V_p)^{2/3}}{A_p} \quad [50]$$

La sphéricité d'une sphère parfaite sera égale à 1, par définition, tandis qu'un volume très déformé aura une valeur de Ψ tendant vers 0. Il est évident que la valeur de Ψ souffre d'une erreur due à la définition de chaque vésicule en termes de pixels. En effet, une bulle hypothétique de 1 pixel³ par exemple, sera représentée en pratique par un cube et donc aura une sphéricité égale à celle d'un cube ($\Psi \sim 0,81$). Cet effet diminue avec l'augmentation du nombre de pixels³ définissant la vésicule. Etant donné que nous n'avons pas considéré les vésicules plus petites que 50 pixels³, nous avons minimisé cet artefact. De même, aucune des vésicules coupées par le bord du cube analysé n'a été prise en compte pour le calcul de la sphéricité.

IV.2.3.g Relations entre les parois reconstruites et les vésicules

A l'aide des listes de vésicules et de parois reconstruites que fournit 3DMA-Rock, il est possible de quantifier les relations qu'il existe entre les vésicules qui ont été virtuellement déconnectées par le programme. Nous pouvons notamment quantifier le nombre de connections que possède une vésicule en fonction de sa taille. Nous avons utilisé les listes de vésicules et celles des constriction fournies par 3DMA-Rock et avons écrit un code Matlab pour pouvoir établir les relations qui existent entre les vésicules, déterminer si la coalescence

affecte des couples de vésicules de taille donnée, si elle se produit différemment d'un échantillon à l'autre, etc. Les résultats sont présentés dans l'article soumis pour publication.

IV.3. Analyse textural des produits des explosions vulcaniennes du volcan Soufrière Hills en 1997 (Montserrat) à l'aide de la microtomographie à rayons X

IV.3.1 Résumé

Des analyses en microtomographie à rayons X ont été réalisées sur quatre pyroclastes provenant des explosions vulcaniennes de 1997 au volcan Soufrière Hills (Montserrat), qui sont largement documentées. Pour la première fois, des données en 3D provenant de plusieurs acquisitions avec des résolutions spatiales différentes (incluant notamment des images d'une résolution de $0,37 \mu\text{m px}^{-1}$) ont été combinées afin de produire des distributions de tailles de cristaux et de vésicules de $2 \mu\text{m}$ jusqu'à $\sim 1 \text{ mm}$ de diamètre. Les densités numériques de vésicules obtenues varient de $6,6 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ dans une bombe en croûte de pain jusqu'à $59,8 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ dans une ponce, et les distributions de tailles de vésicules sont toutes en loi de puissance pour les vésicules $> 20 \mu\text{m}$, indiquant l'intervention de la coalescence qui est observée aussi directement sur les images microtomographiques. Les densités numériques minimales des oxydes sont de $12\text{-}19 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$, des observations directes ainsi que les distributions en loi de puissance à toutes les tailles suggérant que les densités numériques d'oxydes totales sont largement supérieures à celles des vésicules. Les résultats obtenus sont en accord à la fois qualitativement et quantitativement avec ceux obtenus par analyses d'images en 2D. Les porosités totales obtenues sont aussi en accord avec celles obtenues par pycnométrie à hélium.

La coalescence a été étudiée notamment via des distributions de taille de constriction. Celle-ci se produit dans tous les pyroclastes entre vésicules voisines, quelles que soient leurs tailles. Cependant, plus la vésicule est volumineuse, plus elle est connectée à d'autres. La coalescence affecte donc indifféremment les vésicules pré- et syn- explosives, suggérant que le gaz syn-éruptif a rapidement été connecté au réseau de vésicules, à travers lequel il a pu s'échapper. Ce processus est facilité dans les ponces par la finesse des parois entre les bulles qui est observée de façon qualitative mais aussi quantitative.

**Textural analysis of products from the 1997 Vulcanian explosions of
Soufrière Hills Volcano (Montserrat) using X-ray computed
microtomography**

Giachetti T^{1,2,3}, Burgisser A⁴, Arbaret L⁴, Druitt TH^{1,2,3}, Kelfoun K^{1,2,3}.

¹ Clermont Université, Université Blaise Pascal, Laboratoire Magmas et Volcans, BP 10448,
F-63000 CLERMONT-FERRAND

² CNRS, UMR 6524, LMV, F-63038 CLERMONT-FERRAND

³ IRD, R 163, LMV, F-63038 CLERMONT-FERRAND

⁴ Institut des Sciences de la Terre d'Orléans
Université d'Orléans,
1A, rue de la Férollerie
45071 Orléans Cedex 2 (France)

Pour soumission à Bulletin of Volcanology

IV.3.2 Abstract

X-Ray computed microtomography was carried out on four pyroclasts from the well documented 1997 Vulcanian explosions of Soufrière Hills Volcano, Montserrat. For the first time, 3D data from multiple image stacks with different spatial resolutions (including a very high spatial resolution of $0.37 \mu\text{m.px}^{-1}$) were combined to perform vesicle and crystal size distributions from $2 \mu\text{m}$ to 1 mm in diameter. Vesicle number densities range from $6.6 \times 10^{14} \text{m}^{-3}$ in the breadcrust bomb to $59.8 \times 10^{14} \text{m}^{-3}$ in pumices. Size distributions are invariably power-law for vesicles $> 20 \mu\text{m}$, indicating of the importance of bubble coalescence, as supported by visual observation. Minimum Fe-Ti oxides number densities are $12\text{-}19 \times 10^{14} \text{m}^{-3}$, and greatly exceed vesicle densities. Results are in good qualitative and quantitative agreements with those obtained on the same samples using classical 2D textural image-analysis and total vesicularities are consistent with those obtained by He-pycnometry.

The coalescence process was investigated using throat size distributions. Coalescence occurred in all pyroclasts between neighbouring bubbles of any sizes; the larger the vesicle, the more connected it is. Coalescence thus affected indifferently pre- and syn-eruptive bubbles, suggesting that the syn-eruptive gas was rapidly connected to large-scale pathways through which it could escape. This process was largely facilitated in the pumices due to the small thickness of vesicle walls.

Keywords: computed microtomography, coalescence, vesicle size distribution, throat size distribution, Vulcanian explosions, Soufrière Hills Volcano

IV.3.3 Introduction

Explosive volcanic eruptions are triggered by the fragmentation of magmatic foam into a suspension of pyroclasts and gas that is discharged at high velocities into the atmosphere. The extent and intensity of this fragmentation is dependent mainly on the ability of gas to escape out of the magma, and hence on the processes of gas bubble nucleation, growth and coalescence. Studies of pyroclast textures, mainly performed using 2D image-analysis, have advanced understanding of these processes (Klug and Cashman 1994, 1996; Klug et al. 2002; Adams et al. 2006; Giachetti et al. accepted, and references therein), but several questions remain. One important issue concerns the timing of bubble coalescence relative to fragmentation and eruption, which directly controls permeability acquisition and therefore the ability of magma to outgas during ascent (e.g. Eichleberger et al. 1986; Saar and Manga 1999; Gardner 2007; Gonnerman and Manga 2007; Namiki and Manga 2008 and reference therein). Bubble coalescence is a key process in the determination of eruptive style but is difficult to study, especially in two dimensions.

X-ray computed microtomography (μ CT) is a powerful, non-destructive method for imaging textures and for quantifying vesicle spatial relationships and size distributions in 3D. Nevertheless, only a few studies of volcanic pyroclasts using this tool are available at the time of writing (Song et al. 2001; Shin et al. 2005; Polacci et al. 2006; Polacci et al. 2008; Polacci et al. 2009a, b; Degruyter et al. 2009). These studies have however demonstrated the power of μ CT in the understanding of complex textures, such as those of pyroclasts produced during explosive eruptions. In the present study, μ CT was applied to four texturally different samples from the 1997 Vulcanian explosions of Soufrière Hills Volcano, Montserrat. The general features of these explosions were documented by Druitt et al. (2002) and Formenti et al. (2003), and modelled by Clarke et al (2002) and Melnik and Sparks (2002). The pre-explosive conduit stratigraphy and dynamics were reconstructed by Melnik and Sparks (2002), Kennedy et al. (2005), Diller et al. (2006), Clarke et al. (2007), Burgisser et al. (submitted), and Burgisser et al. (in prep). A detailed 2D textural study of these same samples, including high-resolution vesicle and crystal size distributions, was carried out by Giachetti et al. (submitted). Consequently, both the general eruptive dynamics and vesiculation processes during these explosions are well constrained. This context provides a unique chance to compare the results of textural analysis obtained by two methods (2D and 3D image-analysis), applied on the same samples. Moreover, μ CT allows investigation of the coalescence process in three

dimensions that is impossible to perform in a quantitative way using classical 2D images-analysis techniques.

We first recall the major features of the 1997 explosions and summarise the results of Giachetti et al. (submitted) concerning the vesicle size distributions and vesiculation processes occurring before and during a typical Vulcanian explosions. We then describe the acquisition of the tomographic images, and explain the methodology used to calculate the size distributions of vesicles and crystals larger than 2 μm . We emphasize the novelty of our study and compare the results of our 3D textural analysis with those obtained in 2D by Giachetti et al. (submitted) on the same samples, and discuss the relative merits of the two methods. Finally, we investigate the bubble coalescence process, quenched in progress, by estimating throat size distributions and vesicle interconnectivities, and we discuss implications of our results for the processes of magma vesiculation during the 1997 explosions.

IV.3.4 Volcanic context and previous results

The 88 Vulcanian explosions of Soufrière Hills in 1997 occurred every 3-63 hrs (mean of ~ 10 hrs) in two periods: thirteen between 4 and 12 August, and seventy five between 22 September and 21 October (Druitt et al. 2002). Each started with a high-intensity phase lasting a few tens of seconds during which multiple jets were ejected at $40\text{-}140\text{ m.s}^{-1}$ (first 10-20 s), before collapsing back to form pumiceous pyroclastic flows (Formenti et al. 2003). Fallout of pumice and ash occurred from 3-15-km buoyant plumes that developed above the collapsing fountains. A waning phase then followed, lasting 1 to 3 hours. Each explosion discharged on average 8×10^8 kg of magma, two-thirds as pyroclastic flows and one-third as fallout, representing a conduit drawdown of 0.5-2 km (Druitt et al. 2002). Studies of quench pressures using microlite or/and glass water contents support a maximum drawdown of ~ 2 to 3 km (Clarke et al. 2007; Burgisser et al. submitted). Each explosion started when magma overpressure exceeded the strength of an overlying degassed plug and a fragmentation wave propagated down the conduit at a few tens of m.s^{-1} (Druitt et al. 2002; Clarke et al. 2002; Melnik and Sparks 2002; Spieler et al. 2004a-b; Diller et al. 2006; Mason et al. 2006). After each explosion, magma rose up the conduit during the $\sim 10\text{h}$ before the onset of a new explosion.

The Vulcanian products are andesitic and contain $\sim 40\text{-}50\text{ wt\%}$ of phenocrysts of plagioclase, hornblende, orthopyroxene, magnetite, ilmenite and quartz set in a groundmass consisting of microlites (mostly plagioclase and magnetite) and rhyolitic glass, the total

crystal content being 66-90 wt% (Giachetti et al. accepted). The products exhibit a large spectrum of textures including from top to bottom: dense samples and breadcrust bombs from a microlite-rich degassed plug, banded pumices from a transition zone and pyroclastic-flow and fallout pumices derived from a deeper, more homogeneous, gas-rich zone (Burgisser et al. submitted; Giachetti et al. accepted).

A detailed textural study of these samples, including high-resolution 2D vesicle and crystal size distributions, was carried out by Giachetti et al. (submitted). Vesicles constitute 1-66 vol% of breadcrust bombs and 24-79% of pumices, all those larger than a few tens of μm being interconnected. Small vesicles ($<$ few tens of μm) in all pyroclasts are interpreted as having formed syn-explosively, as shown by their presence in breadcrust bombs formed from originally non-vesicular magma. Most large vesicles ($>$ few hundreds of μm) in pumices are interpreted as pre-dating explosion, implying pre-explosive conduit porosities up to 55%. About 15% of large vesicles in pumices, and all those in breadcrust bombs, are angular voids formed by syn-explosive fracturing of amphibole phenocrysts. In pumices, an intermediate-sized vesicle population formed by coalescence of the small syn-explosive bubbles. Nucleation took place heterogeneously on titanomagnetite, number densities of which greatly exceed those of vesicles. Visual evidence of heterogeneous nucleation exist on SEM images. Bubble growth took place mainly by decompression.

IV.3.5 Samples

Field sampling of the 1997 Vulcanian explosion products was carried out in 2006 and 2008. The interior of one coarsely breadcrusted bomb (BCP1c), two dense pumices (AMO29 and AMO36) and one light pumice (PV3), all from pyroclastic flows deposits, were chosen for 3D μCT analysis of vesicle and crystal size distributions. These samples were chosen because they covered the wide range of textures and vesicularities (from 30 vol% in the breadcrust bomb interior until more than 75% in the highly vesicular pumice) observed in the 1997 deposits, and because their vesicle and crystal size distributions have already been measured in 2D (Giachetti et al. accepted).

IV.3.6 Methods

X-ray computed microtomography (μCT) is a powerful, non-destructive method for obtaining information on the texture of a sample, especially the spatial relationships or size distributions of vesicles and crystals. The Vulcanian pyroclasts contain vesicles and crystals spanning several orders of magnitude in size, from $<1\ \mu\text{m}$ to several mm (Giachetti et al.

accepted). In order to cover this wide range of sizes, μ CT images were acquired on each sample at three magnifications, each covering a different size range but with large overlaps.

The largest objects (vesicles and crystals) were imaged using a Skyscan1072 microtomograph at IPROS (Orléans, France). Cylinders of ~ 10 mm in diameter were cut into the samples and analysed using a 80 kV-100 μ A source. During acquisition, samples were rotated 180 degrees around an axis perpendicular to the incident beam, projections being recorded each 0.45° . X-ray projections were then converted to a stack of 1024×1024 pixels² gray-scale images (Figure 80a) using the NRecon software. The scale of these images is $\sim 17.36 \mu\text{m vx}^{-1}$ for all the samples. We considered that an object could be detected on the images if it constituted at least 50 voxels (~ 2.3 pixels in diameter), and that it was statistically represented if it measured 0.001 of the analysed sample volume (i.e., 0.1 of the cube side). Considering these limits, objects between $\sim 80 \mu\text{m}$ and $\sim 900 \mu\text{m}$ in diameter were analysed with this set of images, which will be referred to hereon as the IPROS stack.

Intermediate-size objects were analysed at ISTO, Orléans, using a Nanotom microtomograph manufactured by Phoenix|x-ray. Cylinders of 4.5 mm in diameter were cut from the samples and analysed using a 80 kV-90 μ A source. They were rotated through 360° , projections being recorded at each 0.28° , and 1132×1132 pixels² gray-scale images were obtained by conversion of these projections (Figure 80b). Image scales from 4 to $8 \mu\text{m}$ (depending on the samples) allowed us to detect objects between $\sim 18 \mu\text{m}$ and $400 \mu\text{m}$ in diameter on these images, which will be referred to as the ISTO stack.

Objects smaller than a few tens of μm were captured at the Swiss Light Source on the TOMographic Microscopy and Coherent rAdiology experimenTs beamline (TOMCAT, Villingen, Switzerland). Cylinders of 0.6 mm in diameter were drilled from each sample and analysed. During acquisition, the samples were rotated 360° , and projections were recorded every 0.24° , then converted online to a stack of 2048 gray-scale images of 2048×2048 pixels² each (Figure 80c). The voxel size was $0.37 \mu\text{m}$ for all the samples, rendering analysable objects between $\sim 2 \mu\text{m}$ and $35 \mu\text{m}$. These images will be referred to as the SLS stack.

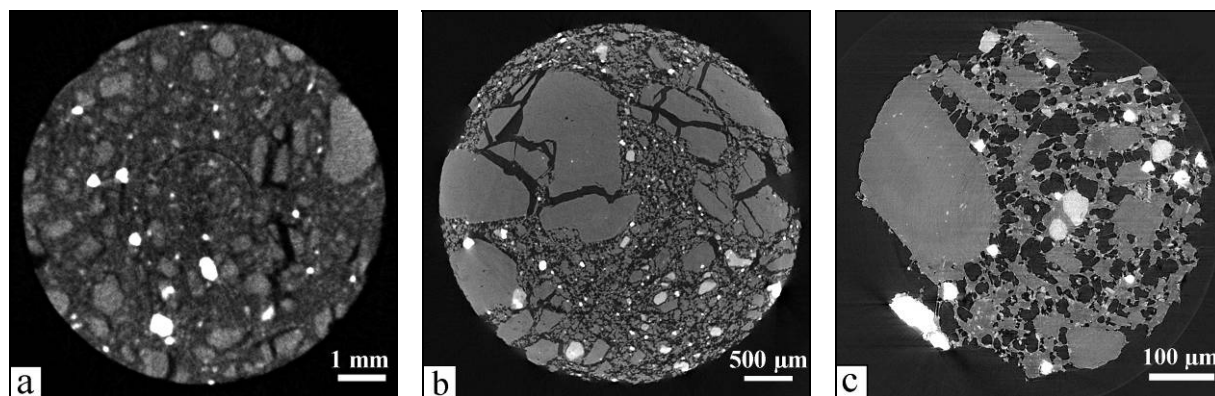


Figure 80. Planes arbitrarily chosen from the three image stacks IPROS (a), ISTO (b) and SLS (c). The image resolutions are ~ 17.4 , ~ 4.0 and $0.37 \mu\text{m}.\text{px}^{-1}$ respectively. The sample is breadcrust bomb BCP1c. Vesicles appear black, glass, plagioclase, hornblende and pyroxene grey, and Fe-Ti oxides white.

IV.3.7 Image analysis

We treated each stack of images in the same manner. First, we obtained qualitative information about texture by analysing the gray-scale images as sequences in the ImageJ software. Qualitative observations were also made by visualizing 3D renderings of parts of the scans using the commercial software package VGStudio. We then extracted quantitative information from the same stacks. Since calculation times are large when working with 3D data, we worked with a texturally representative 300^3 or 400^3 px^3 cube cut from the volume of each stack. We then analysed the images quantitatively using the software packages 3DMA-Rock (Lindquist 1999; Lindquist and Venkatarangan 1999; Lindquist et al. 2000; Prodanovic et al. 2007; Shin et al. 2005) and ImageJ.

For the SLS stack, we first cut a 800^3 px^3 cube from the volume, filtered the images in order to highlight thin objects (e.g. glass fibres), and re-sampled the cube by 2, in order to finally work with a 400^3 px^3 cube at a scale of $0.74 \mu\text{m}.\text{vx}^{-1}$. This was done in order to increase the volume analysed without increasing the calculation time, and without losing too many vesicle walls. Images were then segmented (i.e. converted into binary images) using ImageJ in order to distinguish three classes of objects: vesicles, Fe-Ti oxide crystals, and other crystalline phases (e.g. Figure 81a-b for vesicles). Fe-Ti oxides are easy to distinguish on the images, as they usually appear white. The other crystal phases were highlighted on the IPROS and ISTO images, but it was often impossible to distinguish them from residual glass on the SLS images, due to similar grey-levels. Lists of crystal geometrical parameters were then obtained using ImageJ, which provides a list of all 3D objects present in a stack of binary images. To study the vesicle size distribution we first needed to rebuild some vesicle walls in order to: (1) reconstruct very thin parts that disappeared during the segmentation process, and

(2) disconnect recently coalesced vesicles (i.e. vesicles separated by a partially retracted wall) so as to allow us to reconstruct the state of coalescence immediately prior to sample quench.

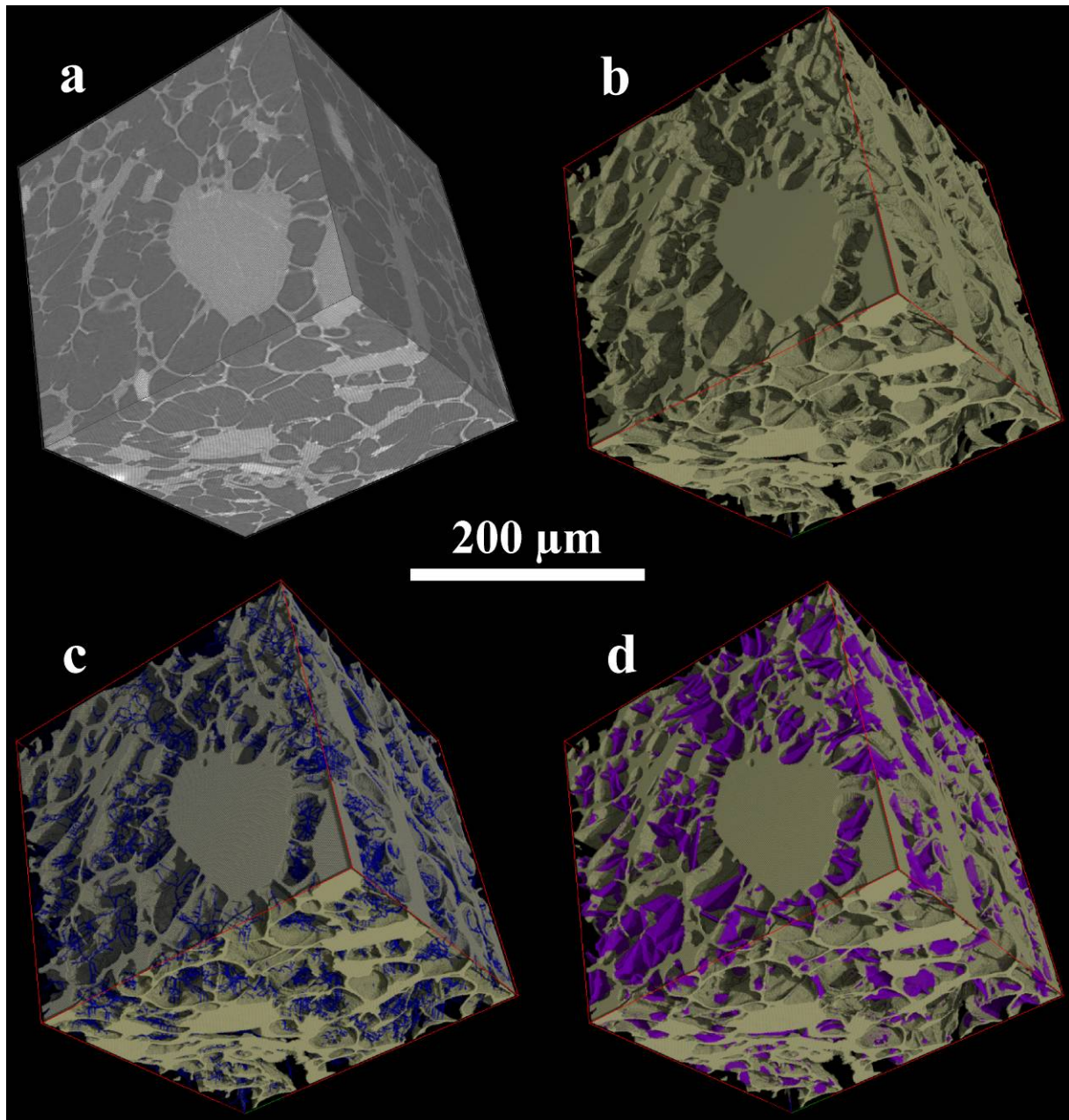


Figure 81. Three-dimensional rendering of the SLS stacks of the pumice PV3. a) Raw, grey-levels images. Vesicles appear in dark grey, glass, plagioclase, hornblende and pyroxene in pale grey, and Fe-Ti oxides in white. b) After segmentation of vesicles. Crystals and glass are shown in brown, and vesicles are not highlighted. c) After 3DMA-Rock calculation of the medial axis that appears as blue points. d) After building of vesicle throats that appear in purple.

The images of each stack were treated using 3DMA-Rock, which rebuilds vesicle walls in two steps. First, a 1-D representation of the vesicle network (medial axis or skeleton, Lindquist and Venkatarangan 1999) was constructed by virtual erosion, layer by layer, of the network voxels, while preserving its topological and geometrical properties (Figure 81c). This medial axis was then cleaned by removing branches artificially computed due to image noise.

Several options and parameters are available in the program while performing this step, each having a different impact on the final medial axis structure. Second, the program broke up the porosity network into individual vesicles by calculating inter-vesicle throats along the medial axis (Figure 81d; Lindquist et al. 2000; Shin et al. 2005; Prodanovic et al. 2006). We used the “aggressive throat computation” option (Prodanovic et al. 2006), which combines three algorithms to perform this step, since our samples are highly vesiculated. Again, several options are available, and these have an impact on the number and locations of throats calculated, and hence on the calculated vesicle size distribution. Finally, 3DMA-Rock provides for each vesicle: its volume, a list of its neighbouring vesicles, the associated throats separating the vesicle from its neighbour(s).

Even by changing the multiple options and parameters used in the trimming of the medial axis and the calculation of throats, we could not totally avoid computation of some non-physical (artificial) throats (Figure 82). However, varying the parameters changed the number and the spatial locations of these non-physical throats (Figure 82a-c). Seven runs using different input parameters were therefore launched on one stack in order to test the impact of non-physical throats on vesicle size distribution and number density. Figure 83 shows that the impact is minor on the vesicle size distribution, since only small variations exist between the seven trials. After visual inspection of several processed stacks, we concluded that 3DMA-Rock has the tendency to forget to rebuild some walls between coalesced vesicles, rather than creating too many artificial ones. For this reason, when several trials were done on one stack using 3DMA-Rock, we used the one that gave the highest number of vesicles in order to build the whole size distribution.

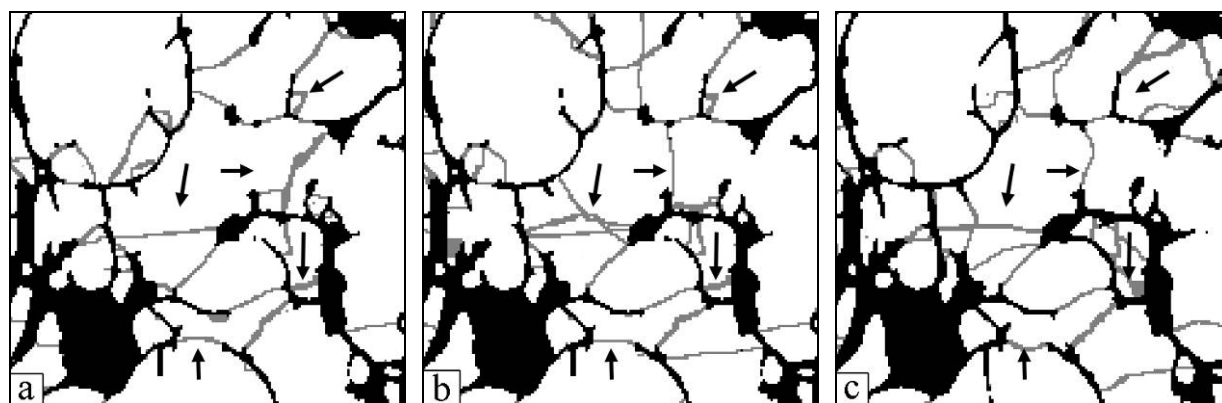


Figure 82. Examples of non-physical throats computed by 3DMA-Rock. Vesicles are shown in white, crystals and glass are in black and the computed vesicle throats are in grey. The five black arrows are at the same place on all the images and show the displacement of computed throats, depending on the input parameters in 3DMA-Rock for the medial axis trimming step.

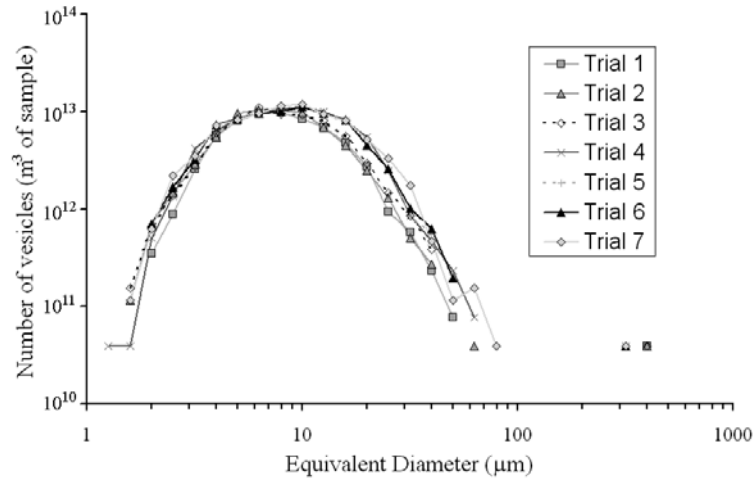


Figure 83. Graph showing the minor impact of non-physical throats on the vesicle number distribution, both in terms of total number density and in terms of the form of the distribution.

The 3DMA-Rock program only recognizes vesicles separated by computed throats (i.e. previously connected vesicles), and naturally isolated vesicles are not identified. Processed images (including computed throats) were therefore re-analysed using ImageJ, which recognizes all vesicles. The difference between the two vesicle lists then provided us with size distribution of both isolated and connected vesicles. Size distributions were then constructed for vesicles, oxide crystals and other crystalline phases, in two steps:

Step 1. Size distribution for each stack. An equivalent diameter D was calculated (assuming spherical shape) for each object, and the volume and number distributions were calculated as functions of D for each stack (Figure 84a-c and Figure 85a).

Step 2. Size distribution for the whole sample using the distributions of each stack. We first defined cut-off limits between magnifications, chosen so that: (1) each object had a diameter of at least 50 voxels, (2) each object was not larger than 0.001 of the relevant stack size, and (3) the vesicle number density distribution was the smoothest as possible. We then normalised the data at each magnification to the volume of the IPROS stack, correcting at each magnification for objects larger than the cut-off limits previously defined. This correction was applied starting at the lowest magnification (IPROS stack) and working progressively upwards. Object volume and number distributions were then obtained for the whole sample (Figure 84d and Figure 85b), and total vesicularity and number density were obtained by summing data from all bins. In total, 6100-54390 crystals and 17820-100480 vesicles were used to build distributions for the whole samples. This method of constructing 3D object size distributions is very similar to that used in 2D by Giachetti et al. (submitted).

We also calculated the sphericity of each vesicle ($\Psi = \pi^{1/3} (6V)^{2/3} / A$, where V is volume and A is external surface area), excluding those vesicles cut by cube edges. A perfect sphere would have $\Psi = 1$, whereas a highly deformed vesicle would have $\Psi \rightarrow 0$.

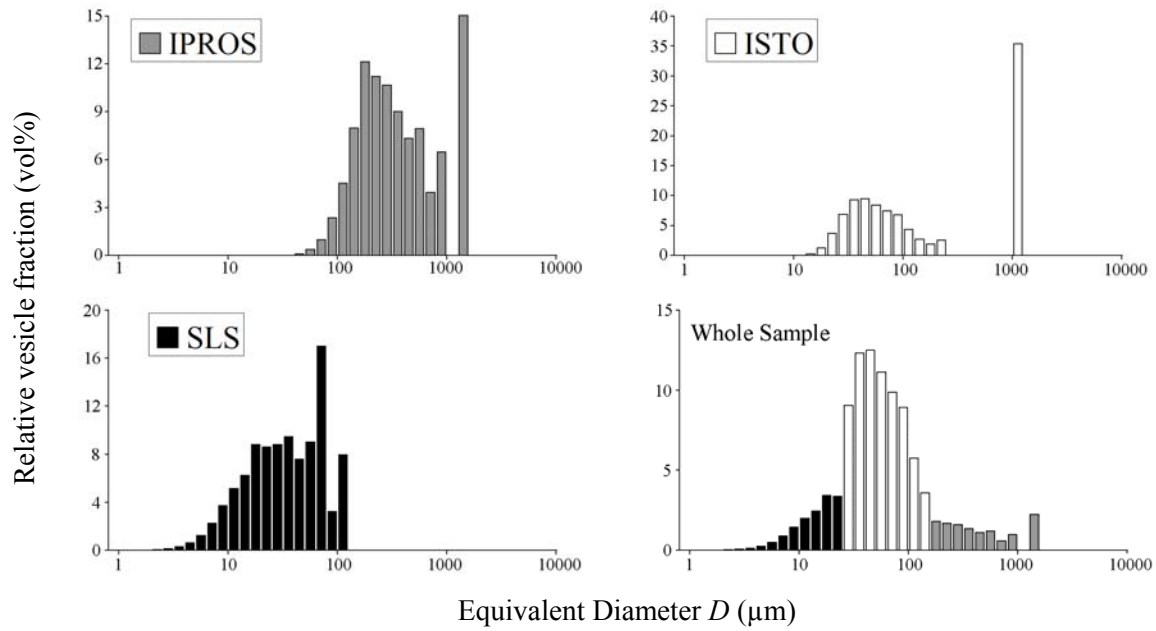


Figure 84. Relative vesicle volume distributions obtained for each single image stack of breadcrust bomb BCP1c, and vesicle volume distribution calculated for the whole sample.

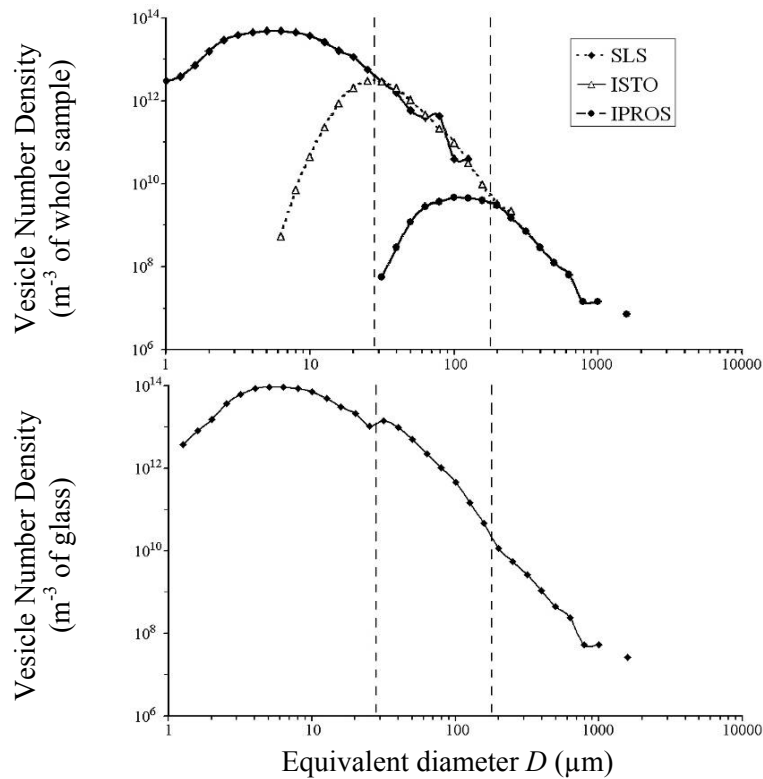


Figure 85. (a) Vesicle number distributions obtained for each image stack for breadcrust bomb BCP1c showing the large overlaps that exist between data from the three stacks. The cut-off limits defined in the text are shown by dashed lines. (b) Number distribution calculated for the

whole sample. Visual inspection shows that only minor artefacts are created by stack combination.

IV.3.8 Results

IV.3.8.a Qualitative observations

The following observations were made in 3D but for reasons of clarity, we often used 2D renderings of particular planes to illustrate our observations.

The three pumices are very similar and are distinct from the breadcrust bomb in their higher bulk vesicularity and thinner vesicle walls. Moreover, the three vesicle size populations recognized by Giachetti et al. (submitted) in 2D are also recognized qualitatively on the 3D images, but with better resolution of textural features and spatial relationships.

Large vesicle population. The IPROS and ISTO stacks highlight the occurrence of both: (A) large angular cracks produced by phenocryst fracture (Figure 86a) and (B) other large vesicles (Figure 86b) that are clearly not linked to phenocrysts. Vesicles of type A are visible in all samples, but occur more commonly in breadcrust bombs (~50% of phenocrysts > 0.5 mm are fractured) than in pumices (<10% of phenocrysts > 0.5 mm are fractured). They occur mostly in amphiboles, but also in oxides or orthopyroxenes, and only affect phenocrysts larger than a few hundreds of microns. Four types of fracture are observed: (1) parallel to crystal length, (2) perpendicular to crystal length (Figure 86c), (3) 1 and 2 in the same crystal (Figure 86a), and (4) rare, more randomly oriented fractures (Figure 86a). All four fracture types occur in the breadcrust bomb, whereas only types (1) or (2) were seen to occur in the pumices. The fractures are never filled by glass, apart from thin glass fibers connecting neighbouring crystal fragments that the high spatial resolution of the SLS images allows us to detect.

Type B vesicles are common in the pumices but very few of them are present in the breadcrust bomb (less than ~5% of large vesicles). These vesicles are ragged, partly flattened vesicles that seem to be mostly aligned parallel the same direction (Figure 86d), and seem to constitute a large fraction of the pumice vesicularity of pumice samples.

Intermediate vesicle population. The intermediate vesicle size population (Figure 86e) formed by coalescence of smaller vesicles, as shown by the presence of many incompletely retracted vesicle walls (Figure 86f), as also observed by Giachetti et al. (submitted), in 2D. This population does not appear clearly in the breadcrust bomb sample (Figure 86h).

Small vesicle population. Vesicles of the small population have more spherical shapes than large or intermediate ones, and are visually mostly isolated in three dimensions. In general, the smaller the vesicle, the thicker the intervening walls (Figure 86e-h). Small vesicles protrude into vesicles of the intermediate and large populations (Figure 86g).

Microlites. Microlites are present in all samples, crystals of magnetite being easily visible since they stand out in white. Plagioclase microlite are qualitatively distinguishable from the glass on the SLS images even if they were not successfully distinguished in a quantitative way. The breadcrust bomb sample seems to contain more plagioclase microlites than the three pumices (Figure 86h) as also concluded by Giachetti et al. (submitted).

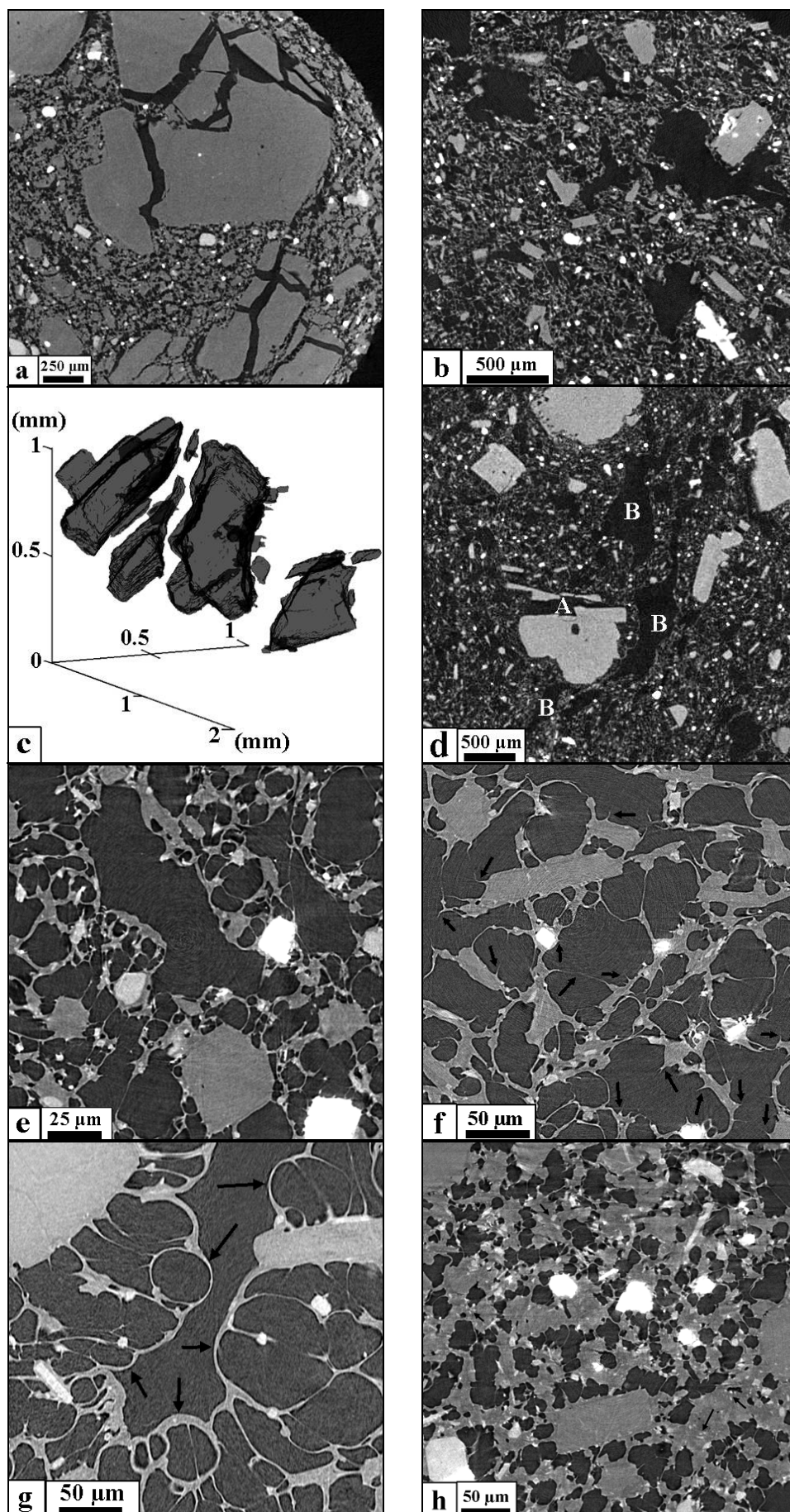


Figure 86. Two- and three-dimensional renderings of particular planes or objects in each stack of images. (a) Large fractured phenocrysts in breadcrust bomb BCP1c. (b) Large, ragged, channel-like vesicles in dense pumice AMO36 set into small and intermediate vesicles. (c) 3D rendering of an amphibole fractured perpendicular to its length (pumice PV3), showing the angular characteristics of the voids formed by this process. (d) Large, elongated bubbles (B), and angular void (A) created by phenocryst fracture in PV3. (e) Intermediate-sized vesicle in dense pumice AMO36. (f) Evidence for coalescence quenched in progress in dense pumice AMO29, shown by the presence of incompletely retracted vesicle walls (black arrows). (g) Extremity of a large, elongated vesicle and its relationships to small and intermediate-sized vesicles. The smaller vesicles penetrate into the large vesicle (black arrows). (h) Texture of the breadcrust bomb interior (BCP1c) on the SLS images. Vesicle walls are thicker and many plagioclase microlites (black arrows) can be distinguished from the residual glass.

IV.3.8.b Quantitative observations

Glass-referenced vesicle-volume distributions are shown for the four samples in Figure 87. Size distributions obtained using 2D image-analysis (Giachetti et al. accepted) for these four samples are provided on the same figure for comparison.

The vesicle volume distribution of the breadcrust bomb is broadly bimodal, although less so than in the 2D data. The large population ($>160\ \mu\text{m}$ with a mode at $\sim 600\ \mu\text{m}$) is accounted for entirely by crystal-associated voids, but does not form (unlike in 2D) a distinct mode. Vesicles of the intermediate and small populations together form a single, broad peak. Almost all the vesicles are interconnected, isolated ones being smaller than a few microns and not represented on these plots. As inferred by visual inspection, the distributions of all three pumices are very similar, with a population of small vesicles with a mode at $20\text{-}30\ \mu\text{m}$, a population of large vesicles ($> 100\text{-}200\ \mu\text{m}$) and a population of intermediate vesicles with a mode at $50\text{ to }70\ \mu\text{m}$, depending on the sample. The population of large vesicles has a minimum at $500\text{-}600\ \mu\text{m}$ (see samples AMO36 and PV3) in all pumice samples. Visual inspection show that vesicles larger than $500\text{-}600\ \mu\text{m}$ are those linked to phenocrysts (type A) whereas those of $100\text{-}500\ \mu\text{m}$ are type B vesicles. Bulk vesicularities calculated by integrating the volume distributions are within 10 vol% of those obtained by He-pycnometry (Table 11).

Despite some artefacts related to image magnification limits (e.g. cut-offs between the ISTO and IPROS data), vesicle sphericity decreases with increasing size throughout the intermediate and large populations, consistent with their more ragged shapes inherited from coalescence (Giachetti et al. accepted).

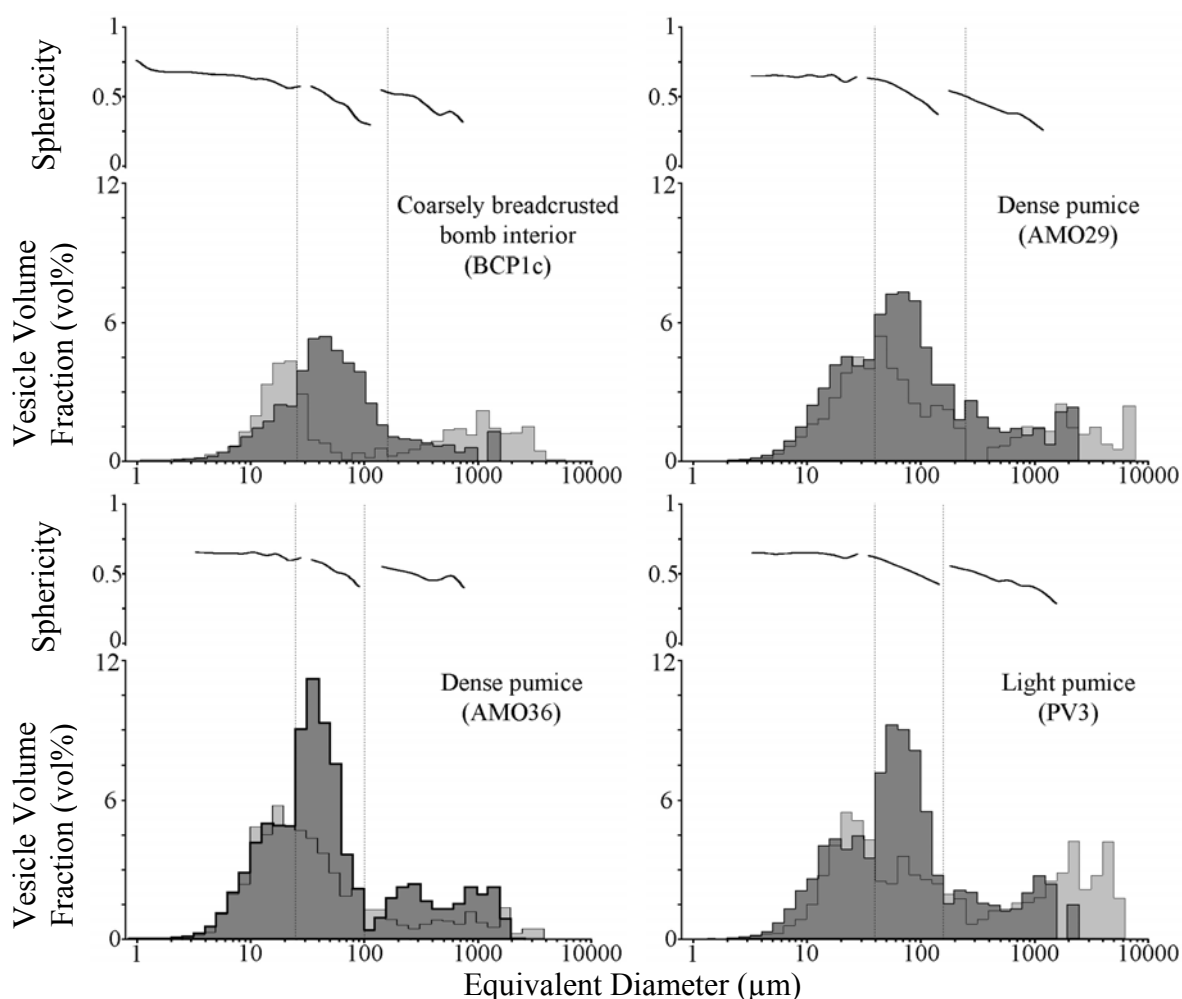


Figure 87. Glass-referenced vesicle volume (dark grey) and sphericity distributions as functions of vesicle size. In light grey in the background and with a thin black line are also represented the vesicle volume distributions obtained by Giachetti et al. (submitted) using 2D image-analysis. The limits between the different stacks are marked by vertical dashed lines and visual inspection show only minor artefacts around 30-40 μm . These artefacts are due to the correction applied for the presence on most of the ISTO and SLS stacks of a package of vesicles that was not successfully dismantled by the 3DMA-Rock program, forming one unrealistic, artificial, vesicle.

Vesicle size distributions plotted using cumulative vesicle number density (Figure 88) are significant to 2 μm . The cumulative number distributions of all four samples are very similar, defining approximately linear trends for vesicles $> 20 \mu\text{m}$. Linear trends on such plots depict power-law distributions, the slope being a fractal dimension (Gaonac'h et al. 1996a, b; Blower et al. 2001). The data from the samples give a slope of -3.5 ± 0.1 . Vesicles smaller than $\sim 20 \mu\text{m}$, which account for more than 99% of the total vesicle number density, fall off the power-law trend, defining a different trend. Total number densities of vesicles $> 2 \mu\text{m}$ range

from $6.6 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ in the breadcrust bomb to $59.1 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ in one of the pumices, but no systematic correlation with pyroclast vesicularity is observed.

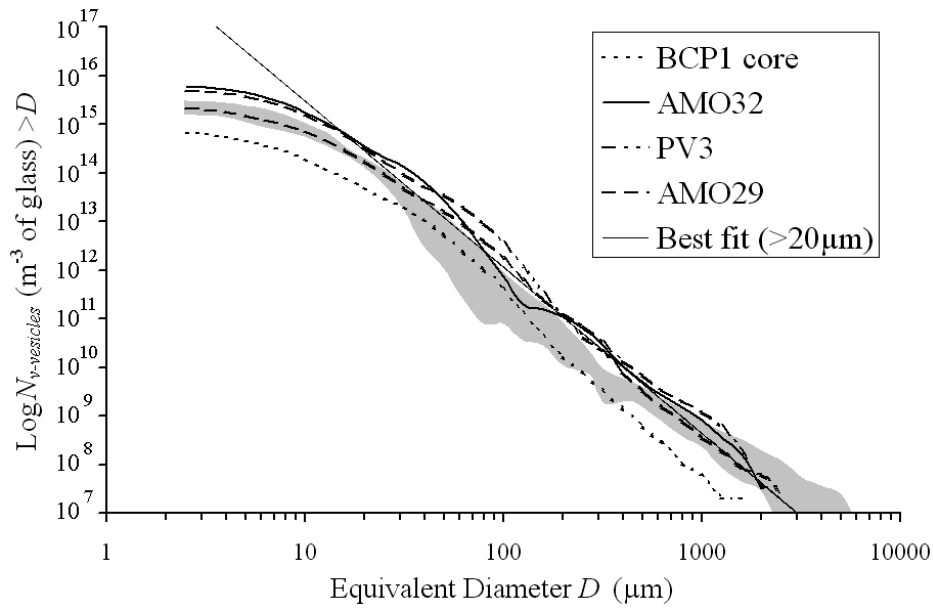


Figure 88. Glass-referenced cumulative vesicle number densities for the four pyroclasts analysed. A best-fit power law for vesicles larger than $20 \mu\text{m}$ is also shown as well as the field (grey) covered by the cumulative vesicle number densities obtained by Giachetti et al. (submitted) for the same sample (cut at $\sim 2 \mu\text{m}$ to be directly compared with our data).

Table 11. Results of textural analysis of explosion pyroclasts and comparison with data obtained on the same samples (Giachetti et al. accepted).

	BCP1 interior	AMO29	AMO36	PV3
Sample type	Coarsely breadcrusted bomb interior	Pyroclastic flow pumice (dense)	Pyroclastic flow pumice (dense)	Pyroclastic flow pumice (highly vesicular)
Bulk Vesicularity – 3D analysis (vol.%)	43	60	70	75
Bulk Vesicularity – 2D analysis (vol.%) ^a	36 ± 2	61 ± 2	57 ± 2	74 ± 2
Bulk Vesicularity – He-Pycnometry (vol.%) ^a	33 ± 2	58 ± 1	61 ± 1	76 ± 1
N_v vesicles $> 2 \mu\text{m}$ – 3D analysis ($\times 10^{14} \text{ m}^{-3}$) ^b	6.6	21.9	59.8	48.4
N_v vesicles $> 2 \mu\text{m}$ – 2D analysis ($\times 10^{14} \text{ m}^{-3}$) ^{a,b}	23 ± 2	16 ± 1	29 ± 4	21 ± 2
Crystallinity vesicle-free – 3D analysis (vol.%) ^c	36	68	69	68
Crystallinity vesicle-free – 2D analysis (vol.%) ^a	79	73	66	55
N_v oxides $> 2 \mu\text{m}$ – 3D analysis ($\times 10^{14} \text{ m}^{-3}$) ^b	12.2	18.2	19.4	12.0
N_v oxides $> 2 \mu\text{m}$ – 2D analysis ($\times 10^{14} \text{ m}^{-3}$) ^{a,b}	40 ± 7	33 ± 3	21 ± 3	17 ± 2
N_v throats $> 2 \mu\text{m}$ – 3D analysis ($\times 10^{14} \text{ m}^{-3}$) ^b	3.4	21.8	12.8	133
H_2O in melt (wt%) ^d	1.10 ± 0.34	0.45 ± 0.31	0.77 ± 0.21	1.32 ± 0.14
Quench pressures P_f (MPa) from H_2O content ^d	10.3 ± 5.9	1.9 ± 2.5	5.2 ± 2.7	14.5 ± 2.8
Decompression rate (MPa.s^{-1}) ^e	0.4-1.5-	0.3-1.7	1.7-5.3	2.5-2.6

^a From Giachetti et al (submitted). N_v values recalculated to a $\sim 2 \mu\text{m}$ limit

^b Glass-referenced

^c Including microlites (except plagioclase that was not distinguished on the SLS stack images)

^d From Burgisser et al (submitted)

^e Using the method of Toramaru (2006) with a temperature of 850°C (Devine et al. 2003) and diffusivities calculated by Giachetti et al. (submitted) for the same samples.

Glass-referenced crystal volume distributions for the four pyroclasts are presented in Figure 89. Three main populations of crystals can be recognised: phenocrysts larger than

~200 μm with a mode at ~1-1.5 mm, microphenocrysts with a mode around 60-100 μm and microlites, smaller than few tens of μm . Total crystal contents calculated vesicle-free are constant in the pumices (68 to 69 vol%), and lower in the breadcrust bomb (36 vol%; Table 1), consistent with the 66-90 wt% of crystals calculated by Giachetti et al. (submitted). Note that our crystal distributions include all crystal data from the IPROS and ISTO stacks, but rarely take into account plagioclase smaller than this size, due to the very low contrast from residual glass on SLS images. This has no effect on the volume distribution (except sometimes an artificial gap between the data from the SLS and from the ISTO stacks), but affects crystal number densities, which are not provided for this reason. It may also explain the abnormally low crystal content of the breadcrusted bomb, which is rich in plagioclase microlites, as previously shown on the SLS images (Figure 86h). Fe-Ti oxides were easily analysed at all scales down to 2 μm and their total glass-referenced number densities are 12 to $19 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ (Table 11). All cumulative oxide size distributions are power-law at all scales (Figure 90). There is no correlation between oxide and vesicle number densities. Note that several microlites being $< 2 \mu\text{m}$, oxide number densities provided here are minima.

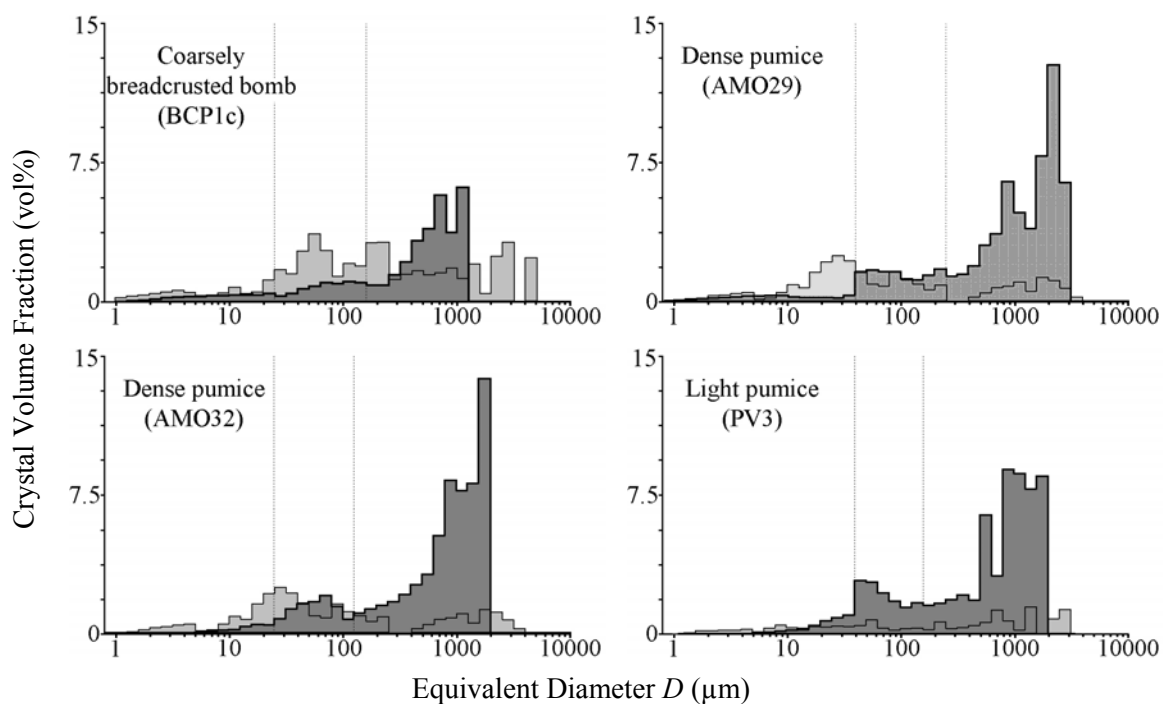


Figure 89. Glass-referenced crystal volume distributions. The vertical dashed lines are the image-stack magnification limits.

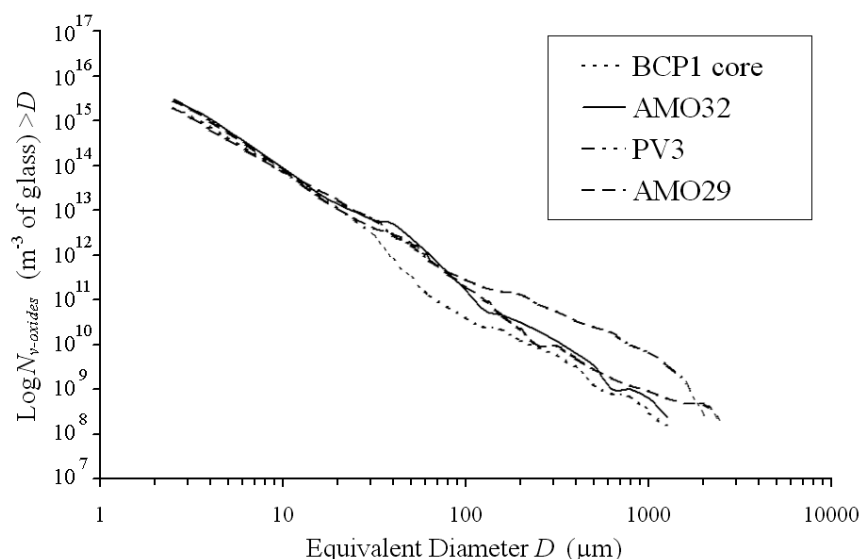


Figure 90. Glass-referenced cumulative oxide number densities for the four pyroclasts analysed. This graph shows that oxides distribution are power-law at all scales.

IV.3.9 Discussion

Polacci et al. (2006) were among the first to use μ CT in a quantitative way on scoria and pumice from explosive volcanic eruptions. They showed in particular a positive correlation between vesicle number density of the sample and eruption intensity, densities varying from $\sim 10^9 \text{ m}^{-3}$ in a Strombolian scoria (Stromboli) up to $\sim 10^{13} \text{ m}^{-3}$ in a pumice from the Campanian Ignimbrite. Polacci et al. (2008; 2009a, b) also used μ CT to measure vesicle size distributions of scoria from Stromboli and Mt. Etna volcanoes. Their data were acquired using relatively low pixel resolutions (14 to $3.85 \text{ } \mu\text{m.px}^{-1}$) and connected vesicles were virtually separated using the Blob-3D program (Ketcham 2005a,b), which is useful software when working with relatively low vesicle number densities and vesicle deformations. However, this procedure does not allow us to deal with the coalescence process, since throat size distribution remains unknown. Moreover, at higher vesicle number densities like those of our samples (number densities up to $\sim 6 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$), vesicle separation is much more problematic, and automated procedures are required. Degruyter et al. (2009) performed μ CT on pumices from the Kos Plateau Tuff with resolutions of ~ 6 and $\sim 15 \text{ } \mu\text{m.px}^{-1}$, and they used the 3DMA-Rock software for quantitative 3D image analysis. They measured vesicle number densities up to $\sim 10^{12} \text{ m}^{-3}$, and used vesicle and throat size distributions to quantitatively relate Darcian permeability to the physical characteristics of the vesicle network.

In our study, the 3D vesicle and crystal size distributions were obtained by combining data from three different image stacks, with very high resolutions (up to $0.37 \text{ } \mu\text{m.px}^{-1}$). Although combining data from several magnifications is a common procedure in 2D image-analysis studies (e.g. Klug et al. 1994; Shea et al. submitted; Giachetti et al. accepted), to our

knowledge, it has not been done before using 3D data. This approach allowed us to measure complete size distributions for vesicles as small as 2 μm and as large as to $\sim 1000 \mu\text{m}$.

IV.3.9.a Comparison with data from 2D image analysis

An important advantage of μCT over 2D image analysis is that it is non-destructive. For example, the problem of crystal plucking during thin sectioning is avoided. Moreover, sample preparation is trivial, since μCT requires only trimming of the sample to fit in the apparatus, sample size depending mostly on the pixel size wanted. Another advantage is that, μCT allows to work with full 3D imaging, and does not require assumptions concerning the shapes of vesicles and crystals that are indispensable when converting surface-referenced number densities to volume-referenced ones in 2D (i.e. the cut effect problem; Cheng and Lemlich 1983; Sahagian and Proussevitch 1998; Shea et al. submitted). On the other hand, μCT produces huge amounts of data that require high computing resources.

The μCT results are now compared to those obtained on the same samples using 2D image analysis (Giachetti et al. accepted). The two methods lead to the same qualitative observations: (1) the textural similarity of all three pumices, which differ from the breadcrust bomb, (2) the existence of distinct small and large vesicle populations in the breadcrust bomb and the existence of a third, intermediate-sized population in the pumices, and (3) the presence in pumices of large, ragged, coalesced vesicles that are essentially absent in the breadcrust bomb. Quantitative parameters obtained by the two approaches are compared in Table 11. Only objects larger than 2 μm are taken into account, since this is the minimum size studied in 3D. Values obtained in 2D were therefore recalculated using a 2 μm cut-off, so as to be comparable to 3D values. Vesicle number densities obtained by the two methods are of the same order of magnitude, 3D values being up 3.5 times lower to 2.3 times higher than the 2D values. In both cases the cumulative number density distributions exhibit power-law trends (attributed to coalescence) for vesicles $>20 \mu\text{m}$ and an exponential trend for those $<20 \mu\text{m}$. Fe-Ti oxide number densities obtained by 3D-analysis are 1.1 to 3.3 times lower than those obtained in 2D. The cumulative number density distribution of oxides obtained in 3D follows a power-law distribution at all scales, as in 2D. These good qualitative and quantitative agreements between the two techniques suggest that our 3D approach has captured the vesicle and crystal size distributions correctly, at least to a first approximation. There is also good agreement between the 3D total vesicularities and those provided by He-pycnometry (see Table 11).

There are, however, some artefacts in the tomography data. First, the 3DMA-Rock program seems to be unable to dismantle a part of the vesicle network on ISTO images, even using the aggressive throat computation option. This has the effect of artificially increasing the amount of intermediate vesicles, explaining why the breadcrust bomb shows a population of intermediate vesicles that does not exist in the 2D vesicle volume distributions. The correction for the presence in some of the ISTO and SLS images of these very large, unrealistic, vesicles not successfully de-coalesced by 3DMA-Rock, artificially increases some peaks in the vesicle volume distributions, in particular those of the intermediate population (Figure 87). Consequently, it slightly increases the total vesicularities of some samples (BCP1c, AMO36) compared to He-pycnometry values (Table 11). However, visual inspection of the raw images and resulting histograms for each stack show that the different vesicle populations mentioned before are real. Moreover, we do not think that this artefact has a large effect on vesicle number distributions as shown by the good concordance between 2D and 3D cumulative number distributions (Figure 90). Even with the very high resolution of the SLS images, isolated vesicles are very rare, due to the presence of some wrongly segmented pixels that artificially connect many isolated vesicles to their neighbours. For this reason, the isolated vesicle population, known to exist from He pycnometry measurements (from ~5 to ~11vol% in these four samples; Giachetti et al. accepted), is almost missing in the 3D results. Finally, the crystal size distributions are significant only for crystals larger than few tens of microns due to the impossibility of quantitatively distinguishing plagioclase from glass on SLS images. This problem could certainly be corrected by changing the image acquisition setup and in particular the beam intensity. On the other hand, the Fe-Ti oxide size distributions are valid down to 2 μm .

IV.3.9.b Origins of the vesicle populations

Since our four samples are the same as in Giachetti et al. (accepted), and since qualitative and quantitative observations are similar in 2D and 3D, our interpretations of vesicle population origins are the same. These interpretations are summarized briefly. Small vesicles that are present in all pyroclasts are interpreted as having nucleated heterogeneously and grown syn-explosively (Giachetti et al. accepted). In particular, they are present in the breadcrust bomb which formed by syn-explosive inflation of initially non-vesicular magma. Intermediate-population vesicles present in pumices are also syn-explosive in origin, because they formed by the coalescence of the small syn-explosive vesicles (Figure 86f). Vesicles of the large population have a mixed origin. The large angular voids formed by phenocryst

fracture are syn-explosive, whereas the large ragged, channel-like vesicles that are commonly present in the pumices, but absent in the breadcrust bombs, are interpreted as being probably pre-explosive, i.e., they existed in the conduit prior to each explosion. The common elongated form of these large vesicles (Figure 86d, g) can be attributed to (1) stretching by viscous flow of bubbly magma in the periods between explosions or, (2) degassing-induced vesicle collapse quenched in progress by the explosion.

IV.3.9.c Mechanisms of syn-explosive vesiculation

- Bubble nucleation

The data confirm the conclusion of Giachetti et al. (accepted) that syn-explosive nucleation of vesicles took place heterogeneously. Oxide cumulative number density follows a power-law distribution at all scales (Figure 90). Tomography-derived oxide number densities down to 2 μm are of the same order of magnitude than those of vesicles, showing that sufficient nucleation sites were available (Table 11). Moreover, there is visual evidence of wetting of oxide crystals by gas, which is consistent with bubble heterogeneous nucleation on titanomagnetite while it is not the case for other mineral phases (Figure 91).

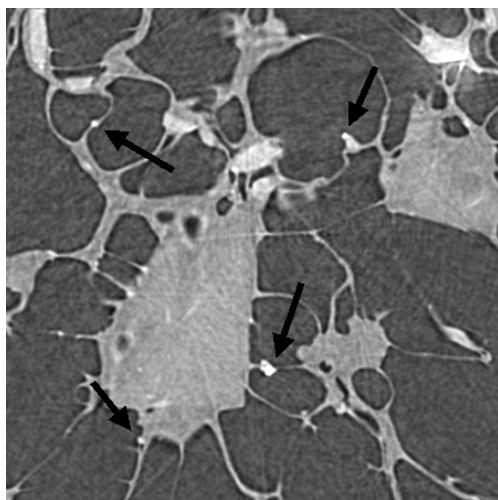


Figure 91. Textural evidence for heterogeneous nucleation of bubbles on titanomagnetite crystals. Contrary to other mineral phases, Fe-Ti oxides are not wetted by glass.

We used the decompression rate meter of Toramaru (2006), the water diffusivities (D) provided by Giachetti et al. (accepted), a temperature (T) of 850°C (Devine et al. 2003), and a surface tension (σ) of 0.025 N m⁻¹ (Cluzel et al. 2008), (Table 11), the interstitial glass water contents and saturation pressures (P_{sat}) estimations of Burgisser et al. (submitted) and our total vesicle number densities (that equal those of the small plus intermediate populations) to calculate syn-explosive decompression rates. The values obtained for the four samples range from 0.4-1.3 MPa s⁻¹ for the breadcrust bomb to 0.3-5.1 MPa s⁻¹ for the pumices. These estimates are consistent with those based on the 2D vesicle number densities (0.3 to 6.5 MPa s⁻¹; Giachetti et al. accepted).

- Bubble coalescence

Computed microtomography provides a unique chance to quantitatively investigate the coalescence process, that could not be studied directly using a 2D approach. The microtomography images confirm the importance of coalescence in the vesiculation of the Vulcanian pyroclasts deduced by Giachetti et al. (submitted). Moreover, 3DMA-Rock provides a list of the walls built in the decoalescence process, and this allows us to construct vesicle throat size distributions using the same approach as used for vesicle size distributions. Cumulative throats number distributions (Figure 92) follow broadly power-law distributions for sizes larger than a few microns, some artefacts related to stack limits occurring at $\sim 30 \mu\text{m}$ and $\sim 200 \mu\text{m}$. Below a few microns, the distributions seem to follow exponential trends, like the vesicle size distributions (Figure 88). Total throat number densities range from 3.4 to $133 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$, with no correlation with vesicle number density. They do, however, correlate with pyroclast vesicularity, being lowest in the breadcrust bomb ($3.4 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$), intermediate in the dense pumices (13 - $22 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$) and highest in the most vesicular pumice ($133 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$). Mean throat diameter ranges from 5.6 to $6.8 \mu\text{m}$. Since throat size distribution and vesicularity both influence permeability (Saar and Manga 1999, Blower 2001; Mueller et al. 2005; Costa 2006; Bernard et al. 2007), we deduce that permeability increases from the breadcrust bomb to the most vesicular pumice (Table 11).

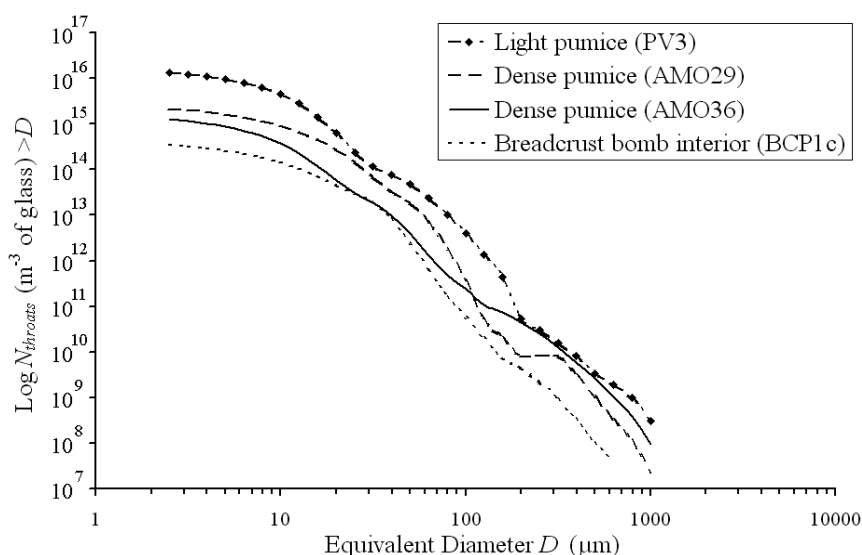


Figure 92. Throat size distributions for the four pyroclasts.

The output files provided by 3DMA-Rock also allow us to determine if there is a relationship between the number of connections per vesicle and its size, and also if coalescence preferentially occurs between vesicles of similar size or not. Since a vesicle could be connected X times to a particular neighbour by X different throats, we analysed both the

number of connections and the number of neighbours for each vesicle (the latter value being equal to, or smaller than, the former). Figure 93 shows the relationship between vesicle size and the average number of connections (a) or neighbours (b). The three sets of curves on each plot correspond to the three image stacks, the number of connections or neighbours of a single vesicle decreasing in the order SLS-ISTO-IPROS due to the progressive decrease in resolution. As intuitively expected, both the number of connections and the number of neighbours increase with vesicle size, but no systematic variation with pyroclast type is observed.

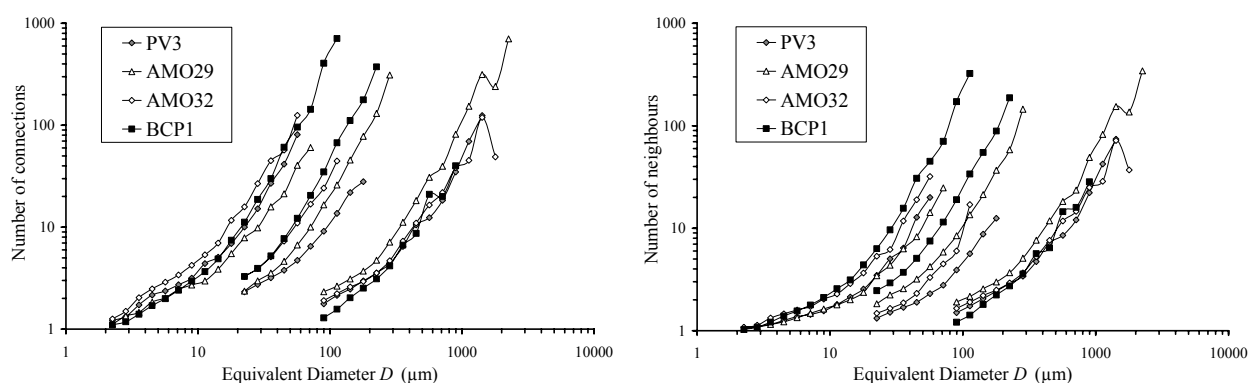


Figure 93. a) Relationships between the size of a vesicle and its number of connections with neighbouring vesicles. b) Relationships between the size of a vesicle and its number of neighbours.

The range of sizes over which coalescence occurs is shown in Figure 94. Each point represents a pair of coalesced vesicles, and for this reason they are symmetrical about a line 1:1 and are represented only on one part. The plots show that coalescence occurs between vesicles of all different sizes, suggesting that, during growth, a vesicle will coalesce with its neighbours irrespective of their size, coalescence affecting indifferently pre- and syn-eruptive bubbles. However, the weak higher concentration of points in a disc in the middle of the data of each stack seems to imply that vesicles preferentially coalesce with neighbour of similar size.

Figure 93 shows that in the breadcrust bomb, the number of connections and neighbours are broadly the same, whereas in the pumices, vesicles have much more connections than neighbours. This is also visible in Figure 94 where the number of points in the graph is higher for the breadcrust bomb sample than for the pumices. This means that in the pumices two neighbouring vesicles are connected by several throats (resulting in a single point on the Figure 94), whereas in the breadcrust bomb, vesicles are connected fewer times with the same vesicle. There are two possible explanations for this observation: (1) vesicles in the pumices are much more deformed than in the breadcrust bomb and thus have more chance

to be connected several times or (2) vesicles walls are thinner in the pumices than in the breadcrust bomb. Process (1) is not favoured by the vesicle sphericity distribution that seems to be identical for breadcrust bomb and pumices (Figure 88). Moreover, the second explanation is supported by direct visual observation (compare Figure 86e-g with Figure 86h). This observation is linked to the fact that bubble growth in the pumices that is better developed than in the breadcrust bomb, resulting in thinner vesicle walls, facilitating the occurrence of coalescence process in the pumices between two vesicles. Thus, μ CT also give indirectly useful information about the mean thicknesses of vesicle walls.

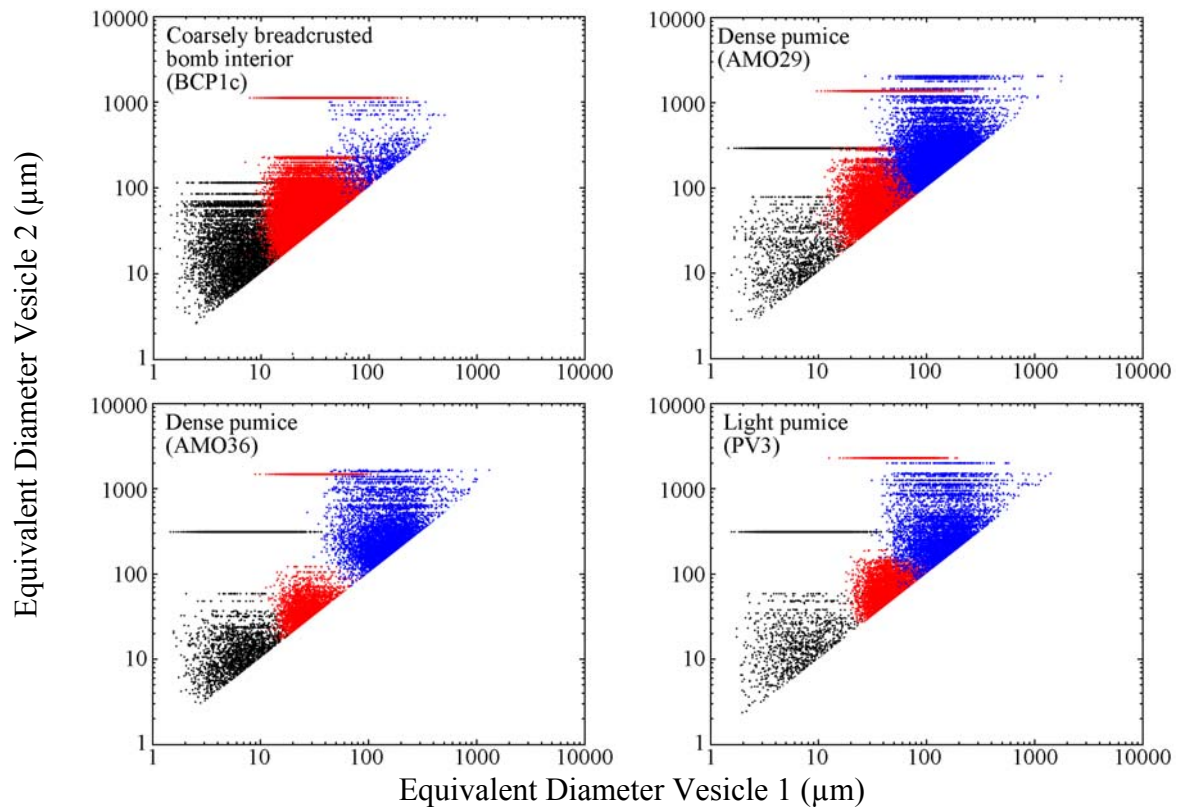


Figure 94. Equivalent diameters of the two vesicles of each couple of coalesced vesicles. These graphs are symmetrical by a line 1:1, by definition.

IV.4. Conclusion

X-Ray computed microtomography was carried out on four pyroclasts from the 1997 Vulcanian explosions of Soufrière Hills Volcano, Montserrat. For the first time, 3D data from multiple image stacks with different spatial resolutions (including a very high spatial resolution of $0.37 \mu\text{m.pixels}^{-1}$) were combined to construct vesicle and crystal size distributions from $2 \mu\text{m}$ up to 1 mm in diameter. High vesicle number densities (up to $\sim 60 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$) associated with very thin vesicle walls ($\sim 1 \mu\text{m}$) rendered quantitative data hard to obtain and required automated decoalescing of the vesicle network. However, these results showed good

qualitative and quantitative agreements with those obtained on the same samples using 2D image-analysis. Bulk vesicularities also show good agreement with those obtained by He-pycnometry. Further improvements in the decoalescence process is needed in order to avoid problems linked to the presence of large, unrealistic, vesicles that were not successfully decoalesced by 3DMA-Rock, and that result in some artefacts in the size distributions.

The use of the 3DMA-Rock program to perform decoalescence of the vesicle network provided a unique chance to investigate the natural coalescence process in 3D. Coalescence in all pyroclasts occurred between neighbouring bubbles of any sizes, but, as intuitively expected, the larger the vesicle, the more connected it is. Coalescence thus affected indifferently pre- and syn-explosive bubbles, suggesting that the syn-explosive gas was rapidly connected to large-scale pathways through which it could escape. This process was largely facilitated in the pumices due to the small thickness of vesicle walls.

IV.5. Acknowledgments

This project was partly funded by the French Agence Nationale de la Recherche (ANR-EXPLANT, Contract No ANR-05-CATT-003 to C. Martel). The study benefited from discussions with Jonathan Castro, Wim Degruyter, Emmanuel Le Trong. Marco Stampanoni, Emmanuel Le Trong and David Picard helped us at the Swiss Light Source and Armelle Basillais acquired the IPROS stacks at the Institut de Prévention et de Recherche sur l'Ostéoporose (IPROS), Orléans.

IV.6. References

- Adams NK, Houghton, BF, Hildreth W, (2006) Abrupt transitions during sustained explosive eruptions: examples from the 1912 eruption of Novarupta, Alaska. *Bull. Volcanol.* 69, 189-206
- Bernard ML, Zamora M, Geraud Y, Boudon G (2007) Transport properties of pyroclastic rocks from Montagne Pelee volcano (Martinique, Lesser Antilles). *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* 112(B5)
- Blower JD, Keating JP, Mader HM, Phillips JC (2001) Inferring degassing processes from vesicle size distributions. *Geophys. Res. Lett.* 28, 347-350
- Bouvet de Maisonneuve C, Bachmann O, Burgisser A (2008) Characterization of juvenile pyroclasts from the Kos Plateau Tuf (Aegean Arc): insights into the eruptive dynamics of a rhyolitic caldera-forming eruption. *Bull Volcanol.* Doi: 10.107/s004455-008-0250-x
- Cheng HC, Lemlich R (1983) Errors in the measurement of bubble-size distribution in foam. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals* 22, 105–109
- Clarke AB, Neri A, Voight B, Macedonio G, Druitt TH (2002). Computational modelling of the transient dynamics of the August 1997 vulcanian explosions at Soufrière Hills Volcano, Montserrat; influence of initial conduit conditions on near-vent pyroclastic dispersal. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (ed) *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999. Geological Society of London Memoir*, vol. 21, 319-348
- Clarke AB, Stephens S, Teasdale R, Sparks RSJ, Diller K (2007) Petrologic constraints on the decompression history of magma prior to Vulcanian explosions at the Soufrière Hills volcano, Montserrat. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 161, 261-274

- Cluzel N, Laporte D, Provost A, Kannewischer I (2008) Kinetics of heterogeneous bubble nucleation in rhyolitic melts: implications for the number density of bubbles in volcanic conduits and for pumice textures. *Contrib. Mineral. Petrol.* 156, 745-763
- Costa A (2006) Permeability-porosity relationship: A reexamination of the Kozeny-Carman equation based on a fractal pore-space geometry assumption. *Geophysical Research Letters* 33(2):- Eichleberger JC, Carrigan CR, Westrich HR, Price RH (1986) Non-explosive silicic volcanism. *Nature* 323:598-602
- Degruyter W, Bachmann O, Burgisser A (in press) Controls on permeability in the volcanic conduit during the climatic phase of the Kos Plateau Tuff eruption (Aegean Arc). *Bull Volcanol.* Doi:10.1007/s00445-009-0302-x
- Devine JD, Rutherford MJ, Norton GE, Young, SR, (2003) Magma storage region processes inferred from geochemistry of Fe-Ti oxides in andesitic magma, Soufriere Hills Volcano, Montserrat, WI. *Journal of Petrology* 44, 1375-1400
- Diller K, Clarke AB, Voight B, Neri A (2006) Mechanisms of conduit plug formation: implications for vulcanian explosions. *Geophys. Res. Lett.* 33:L20302
- Druitt TH, Young SR, Baptie BJ, Bonadonna C, Calder ES, Clarke A., Cole PD, Harford CL, Herd RA, Lockett R, Ryan G, Voight B (2002) Episodes of cyclic vulcanian explosive activity with fountain collapse at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: Druitt TH, Kokelaar BP (Eds.), *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999. Geological Society of London Memoir* (21):281-306
- Eichelberger JC, Carrigan CR, Westrich HR, Price RH (1986) Non-explosive silicic volcanism. *Nature.* 323, 598-602
- Formenti Y, Druitt TH, Kelfoun K (2003) Characterisation of the 1997 Vulcanian explosions of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, by video analysis. *Bull Volcanol* 65:587-605
- Gaonac'h H, Lovejoy S, Stix J, Schertzer D (1996a) A scaling growth model for bubbles in basaltic flows. *Earth Planet. Sci. Lett.* 139:395-409
- Gaonac'h H, Stix J, Lovejoy S (1996b) Scaling effects on vesicles shape, size and heterogeneity of lavas from Mount Etna. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 74:131-153
- Gardner JE (2007) Heterogeneous bubble nucleation in highly viscous silicate melts during instantaneous decompression from high pressure. *Chem. Geol.* (236): 1-12
- Gonnerman HM, Manga M (2007) The fluid mechanics inside a volcano. *Annu Rev Fluid Mech* 39:321-356. doi: 10.1146/annurev.fluid.39.050905.110207
- Kennedy B, Spieler O, Scheu B, Kueppers U, Taddeucci J, Dingwell DB (2005) Conduit implosion during Vulcanian eruptions. *Geology* 33, 581-584
- Ketcham RA (2005a) Computational methods for quantitative analysis of three-dimensional features in geological specimens. *Geosphere* 1(32-41)
- Ketcham RA (2005b) Three-dimensional grain fabric measurements using high-resolution X-ray computed tomography. *Journal of Structural Geology* 27(7):1217-1228
- Klug C, Cashman KV (1994) Vesiculation of May 18, 1980, Mount St. Helens magma. *Geology.* 22:468-472
- Klug C, Cashman KV (1996) Permeability development in vesiculating magmas: implications for fragmentation. *Bull. Volcanol.* 58:87-100
- Klug C, Cashman KV, Bacon CR (2002). Structure and physical characteristics of pumice from the climatic eruption of Mount Mazama (Crater Lake), Oregon. *Bull. Volcanol.* 64:486-501
- Lindquist WB (1999) 3DMA general users manual. SUNY-Stony Brook technical report SUNYSB-AMS-99-20
- Lindquist WB, Venkatarangan A (1999) Investigating 3D geometry of porous media from high resolution images. *Physics and Chemistry of the Earth Part a-Solid Earth and Geodesy* 24(7):593-599
- Lindquist WB, Venkatarangan A, Dunsmuir J, Wong TF (2000). Pore and throat size distributions measured from synchrotron X-ray tomographic images of Fontainebleau sandstones. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* 105(B9):21509-21527
- Mason RM, Starostin AB, Melnik OE, Sparks RSJ (2006) From Vulcanian explosions to sustained explosive eruptions: the role of diffusive mass transfer in conduit flow dynamics. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 153:148-165
- Melnik O, Sparks RSJ (2002) Modelling of conduit flow dynamics during explosive activity at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: Druitt TH, Kokelaar BP (ed) *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999. Geological Society of London Memoir*, vol. 21, 307-317
- Mueller S, Melnik O, Spieler O, Scheu B, Dingwell DB (2005) Permeability and degassing of dome lavas undergoing rapid decompression: An experimental determination. *Bulletin of Volcanology* 67(6):526-538
- Namiki A, Manga M (2008) Transition between fragmentation and permeable outgassing of low viscosity magmas. *J Volcanol Geotherm Res* 169(1-2):48-60. doi:10-1016/j.jvolgeores.2007.07.020

- Polacci M, Baker DR, Mancini L, Tromba G, Zanini F (2006). Three-dimensional investigation of volcanic textures by X-ray microtomography and implications for conduit processes. *Geophysical Research Letters* 33(13):L13312. doi: 10.1029/2006GL026241
- Polacci M, Baker DR, Liping B, Mancini L (2008) Large vesicles record pathways of degassing at basaltic volcanoes *Bull Volcanol* 70:1023-1029
- Polacci M, Burton MR, La Spina A, Murè F, Favretto S, Zanini F (2009a) The role of syn-eruptive vésiculation on explosive basaltic activity at Mt. Etna, Italy. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 179, 265-269
- Polacci M, Baker DR, Mancini L, Favretto S, Hill RJ (2009b) Vesiculation in magmas from Stromboli and implications for normal Strombolian activity and paroxysmal explosions in basaltic systems. *J. of Geophys. Res.* 114, B01206
- Prodanovic M, Lindquist WB, Seright RS (2006) Porous structure and fluid partitioning in polyethylene cores from 3D X-ray microtomographic imaging. *Journal of Colloid and Interface Science* 298(1):282-297
- Prodanovic M, Lindquist WB, Seright RS (2007) 3D image-based characterization of fluid displacement in a Berea core. *Advances in Water Resources* 30(2):214-226
- Saar MO, Manga M (1999) permeability-porosity relationship in vesicular basalts. *Geophysical Research Letters* 26(1):111-114
- Sahagian DL, Proussevitch AA (1998) 3D particle size distributions from 2D observations: stereology for natural applications. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 84:173-196
- Shin H, Lindquist WB, Sahagian DL, Song S-R (2005) Analysis of the vesicular structure of basalts. *Comput Geosci* 31(4):473-487. doi:10.1016/j.cageo.2004.10.013
- Song SR, Jones KW, Lindquist WB, Dowd BA, Sahagian DL (2001). Synchrotron X-ray computed microtomography: studies on vesiculated basaltic rocks. *Bull Volcanol.* 63(4):252-263. doi: 10.1007/s004450100141
- Spieler O, Dingwell DB, Alidibirov M (2004a) Magma fragmentation speed: an experimental determination. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 129:109-123
- Spieler O, Kennedy B, Kueppers U, Dingwell DB, Scheu B, Taddeucci J (2004b) The fragmentation threshold of pyroclastic rocks. *Earth Planet. Sci. Lett.* 226(1-2):139-148
- Toramaru A (2006) BND (bubble number density) decompression rate meter for explosive volcanic eruptions. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 154:303-316

V. Etude texturale d'une série de
bombes en croûte de pain

V.1. Introduction

L'étude texturale en deux dimensions réalisée sur l'ensemble des textures des produits des explosions volcaniennes de la Soufrière Hills en 1997 (Chapitre 3), a été complétée par une étude détaillée d'une série de bombes en croûte de pain. Ces types de clastes caractéristiques des explosions volcaniennes (e.g. Morrissey et Mastin 2000) sont définis par la présence d'une croûte externe fracturée plus ou moins épaisse et relativement dense par rapport à l'intérieur qui est plus vésiculé. De plus, en raison de leur position stratigraphique dans le conduit juste avant une explosion (entre les échantillons totalement denses et les ponces, < 10-20 MPa ; Burgisser et al. soumis ; Chapitre 2), ainsi que de leur texture à la fois proche des échantillons denses (bordure dense) et des ponces (intérieur vésiculé), elles constituent une texture clé dans la compréhension du processus de vésiculation du magma lors d'une explosion volcanienne.

La provenance de cette double texture a été variablement interprétée comme étant le résultat de la trempe de la partie externe par un contact avec l'eau (e.g. Fisher et Schmincke 1984 ; Francis 1993) ou encore de la vésiculation retardée d'un magma partiellement dégazé (e.g. Turcotte et al. 1990 ; Hoblitt et Harmon 1993 ; Yamagishi et Freebey 1994). La fracturation de la partie externe de la bombe peut être provoquée par (1) l'expansion de l'intérieur de la bombe fracturant une croûte déjà trempée, (2) la contraction thermique de la surface externe ou (3) des contraintes lors de l'impact. Walker (1969, 1982) explique la différence de textures par des différences de temps de refroidissement, résultant en des variations de rhéologie dans le magma. En utilisant des mesures de teneur en eau dans des bombes produites lors de l'explosion du crypto-dôme du Mont Saint Helens en 1980, Hoblitt et Harmon (1993) ont montré qu'un dégazage pré-éruptif avait engendré un retard à la nucléation assez long pour pouvoir former les croûtes denses des bombes en croûte de pain. Polacci et al. (2001) ont eux proposé que les bombes issues de la phase paroxysmale du Pinatubo le 15 juin 1991 ont été créées par des zones localement très chaudes et plus pauvres en volatils.

Plus récemment, Wright et al. (2007) ont mené une étude sur une série de bombes en croûte de pain issues de l'éruption volcanienne du Guagua Pichincha en 1999, en Equateur, sur lesquelles ils ont réalisé de nombreuses mesures texturales ainsi que des analyses chimiques à la fois sur la croûte et sur l'intérieur. Ces mesures leur ont permis de mettre en évidence une teneur limite en eau du magma de 0,4-0,9 %pds au-dessous de laquelle aucune

nucléation ne se produit, engendrant des clastes totalement denses. Pour les échantillons dont la teneur en eau est supérieure à $\sim 0,9$ %pds, seule la croûte reste dense et vitreuse et l'intérieur est vésiculé. Au-dessus de $\sim 1,4$ %pds d'eau dans le liquide, les croûtes deviennent plus fines et plus vésiculées. A l'aide d'un modèle balistique (Mastin et al. 2001) et d'un modèle de refroidissement (Sowerby et Keppler 1999 ; Thomas et Sparks 1992), Wright et al. (2007) ont déterminé que la vésiculation dans les bombes ayant une croûte dense et épaisse a continué après l'impact de celles-ci avec le sol, alors que la vésicularité des bombes ayant une croûte plus fine et plus vésiculée était déjà acquise avant l'impact. Ils ont aussi démontré que l'expansion n'expliquait qu'en partie la création des fractures traversant la croûte, d'autres mécanismes comme la contraction thermique doivent, selon eux, nécessairement jouer un rôle dans la fracturation de la bordure. Enfin, ils ont utilisé ces relations texturales pour proposer un modèle de conduit des explosions vulcaniennes du Pichincha.

Nous avons mené une étude sur une trentaine de bombes en croûte de pain issues des dépôts vulcaniens de la Soufrière Hills. La plupart des bombes ont été décrites sur le terrain et treize ont été transportées intactes et étudiées en détails. Des mesures de pycnométrie à hélium à la fois sur la bordure et sur l'intérieur des bombes, de l'épaisseur de la croûte, des volumes de fractures, ainsi que l'utilisation d'un modèle d'expansion nous ont permis de mettre en évidence le rôle important de la vésiculation et donc de l'expansion de l'intérieur, dans la fracturation de la bordure des bombes en croûte de pain. De plus, l'association de ces données avec les résultats de distributions de taille de vésicules effectuées sur la bordure et sur l'intérieur de deux bombes caractéristiques, nous a permis de mieux comprendre l'origine de la différence entre l'intérieur et la bordure de la bombe ainsi que la différence de texture entre les bombes et les autres types d'échantillons.

V.2. Méthodes

V.2.1 Echantillonnage

Les bombes en croûte de pain ont toutes été échantillonnées dans les dépôts de coulées pyroclastiques sur les sites de Trants et de Plymouth (sites 1 et 2 sur la Figure 59 ; Giachetti et al. soumis) lors de deux missions de terrain en juillet 2006 et juillet 2008 (cf. Chapitre 3). Lors de la deuxième campagne de terrain, nous avons mené une étude détaillée des bombes en croûte de pain durant laquelle nous avons mesuré la plupart des bombes que nous trouvions dans les dépôts vulcaniens, déterminé l'épaisseur de leur bordure quand cela était possible et noté leurs caractéristiques principales. Puis, nous avons récolté à chaque fois des fragments de

la croûte et de l'intérieur pour analyses. Enfin, treize bombes ont été emmenées pour être mesurées et décrites en détails. Elles ont été choisies car elles couvraient toute la gamme de textures observées et qu'elles étaient transportables intactes. Elles ont été nettoyées, décrites, photographiées et diverses mesures ont été effectuées sur chacune d'entre elles. Chaque bombe a ensuite été découpée en deux parties dont l'une a été ramenée pour analyses en laboratoire.

Toutes ces bombes ne proviennent pas d'une seule explosion volcanienne et nous ne pouvons pas les associer à une explosion en particuliers, en raison notamment de la complexité des dépôts. Néanmoins, nous pouvons supposer qu'elles représentent les bombes en croûte de pain émises lors d'une explosion volcanienne moyenne, car ces explosions sont très similaires au premier ordre (Druitt et al. 2002 ; Clarke et al. 2002) et que la présence de bombes en croûte de pain a été observée dans tous les dépôts, même si leur proportion varie d'un lobe de coulée pyroclastique à l'autre.

V.2.2 Classement des bombes dans des groupes texturaux

Compte-tenu du panel de textures proposé par les bombes en croûte de pain, nous avons classé tous les échantillons dans quatre groupes texturaux définis à partir des treize bombes étudiées en détails. Il est à noter que les treize bombes utilisées pour définir les groupes ne présentaient qu'une seule génération de fractures et ont été transportées intactes. Les bombes observées sur le terrain mais non transportées ont ensuite été reclassées dans ces quatre groupes, à partir de leur description et des photographies effectuées.

Les quatre groupes de bombes en croûte pain (G1 à G4) ont été définis en fonction des caractéristiques extérieures des bombes, incluant la couleur de la bordure, l'épaisseur de la croûte, la largeur et la profondeur des fractures de surface ainsi que la densité apparente de la bombe. Le premier groupe de bombes (G1) est constitué de clastes dont la croûte est quasiment noire, dense et vitreuse et dont les fractures sont assez nombreuses, étroites, angulaires, et peu profondes (Figure 95, G1). Les bombes du groupe 2 (G2) sont caractérisées par des fractures moins nombreuses, très angulaires, plus profondes et plus larges, et par une croûte dense, foncée et épaisse (Figure 95, G2). Le groupe 3 (Figure 95, G3) regroupe les échantillons qui paraissent globalement moins denses que ceux du groupe G2, avec des croûtes plus claires, plus vésiculées et des fractures bien marquées. Enfin, les bombes du groupe 4 (Figure 95, G4) sont marquées par des fractures plus nombreuses mais plus fines, formant des polygones plus arrondis, et par une croûte fine et claire, fortement vésiculée. Il

est à noter que la croûte a parfois été difficilement distinguée de l'intérieur pour les bombes du groupe G4, en raison de la faible différence de vésicularité entre les deux parties. De même, certaines bombes ont été difficilement classées dans un groupe car elles possédaient des caractéristiques ambiguës, pouvant être attribuée à l'un ou l'autre des groupes. Après classement, il semble que les bombes de type G1 et G4 soient plus rares que les bombes des types G2 et G3. Les treize bombes étudiées en détails ont ensuite été coupées en deux à l'aide d'une meuleuse et d'un burin.

Ces quatre groupes texturaux s'inscrivent dans le spectre complet de textures présenté par les produits vulcaniens, entre les échantillons denses dont le groupe G1 est très proche, et les ponces sur lesquelles aucune surface en croûte de pain n'est observée, et auxquelles les bombes du groupe G4 sont très similaires. De plus, Burgisser et al. (soumis) ont montré que les bombes en croûte de pain se trouvaient avant chaque explosion dans une zone stratigraphiquement située entre les échantillons denses du bouchon dégazé et les ponces. Dans Giachetti et al. (soumis) nous n'avons utilisé, pour simplifier, que deux bombes en croûte de pain dont les textures étaient très différentes et constituaient deux extrêmes dans le spectre de textures présentées par les bombes. Dans l'article, l'appellation *coarsely breadcrusted bomb* a été utilisée en référence à la bombe BCP1 qui appartient au groupe G2, et la bombe BCP43 qui appartient au groupe G4 a été nommée *finely breadcrusted bomb*. Ces dénominations résument bien les caractéristiques texturales de ces bombes.

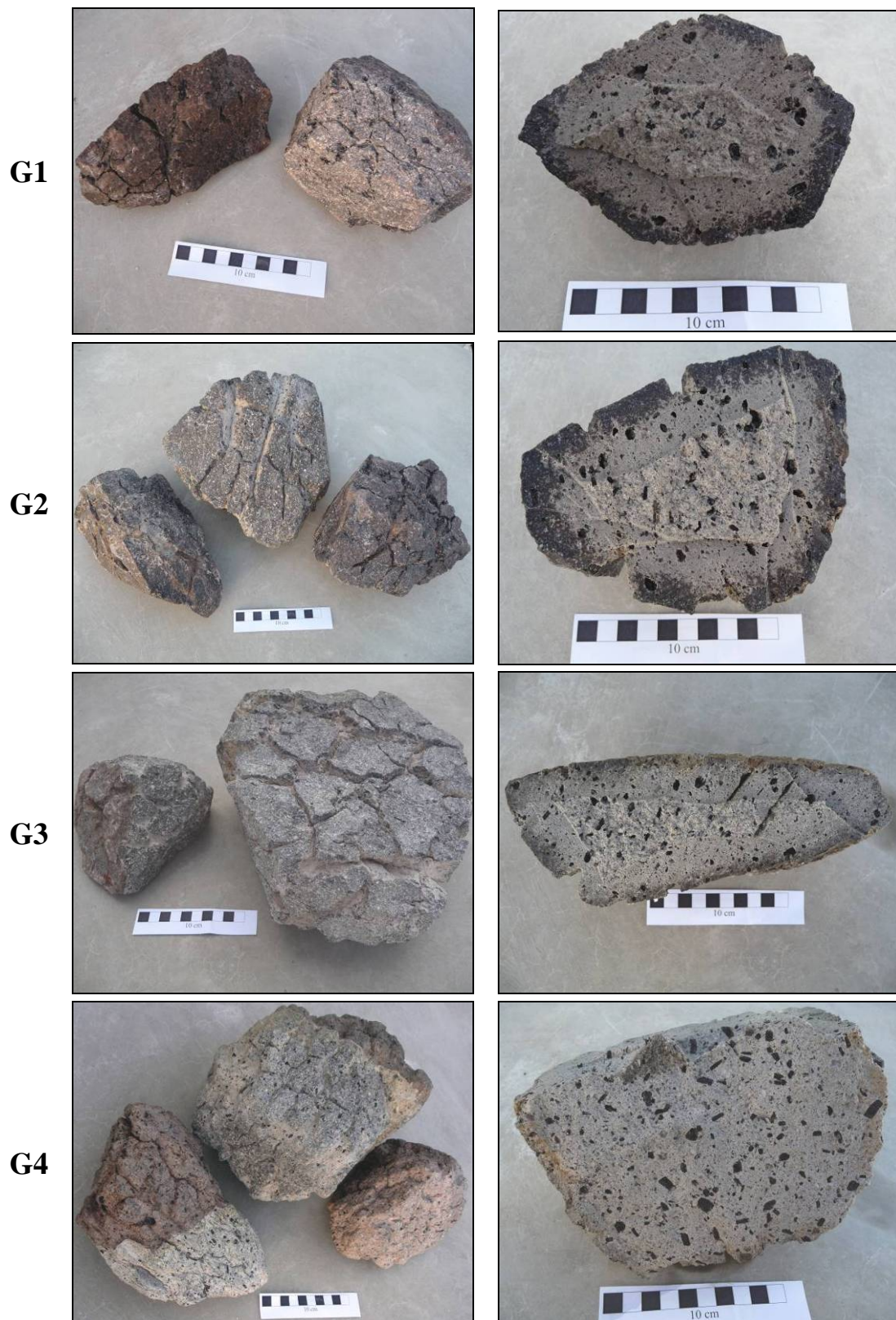


Figure 95. Bombes caractéristiques des différents groupes texturaux (G1 à G4).

Chacune des treize bombes a d'abord été observée à l'œil nu puis à la loupe binoculaire, afin d'en extraire les informations texturales principales. Certaines, considérées comme caractéristiques d'une texture particulière ont ensuite été observées au Microscope

Electronique à Balayage (MEB), à la fois en électrons rétrodiffusés et en électrons secondaires. L'observation ayant lieu à la fois sur des surfaces cassées mais aussi sur des lames minces d'échantillons préalablement résinés. Une majeure partie des bombes a ensuite subi des mesures texturales concernant la bordure, les fractures, et l'intérieur vésiculé.

V.2.3 Mesure des volumes des bombes et des fractures

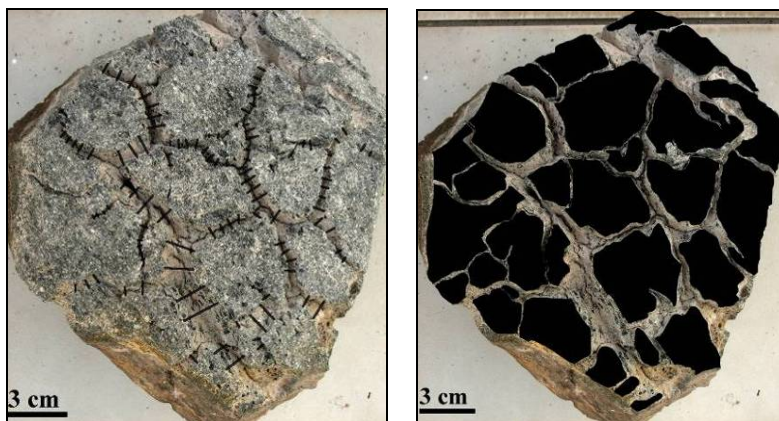
Dans le but d'évaluer dans quelle proportion les fractures traversant la bordure sont liées à l'expansion de l'intérieur de la bombe, nous avons mesuré à la fois le volume de la bombe mais aussi celui de ses fractures de surface, pour les treize bombes entières. Le volume externe de la bombe (incluant le volume représenté par les fractures) a d'abord été mesuré en utilisant le principe d'Archimède. Chacune des bombes a été emballée dans du papier aluminium, en veillant à ce que celui-ci n'entre pas dans les fractures. Puis la bombe a été mise dans un sac en plastique fin, le tout étant placé dans un récipient cylindrique partiellement rempli d'eau. La pression exercée par l'eau sur le sac en plastique plaquait ce dernier sur la feuille d'aluminium, expulsant tout l'air potentiellement présent. La variation de niveau d'eau dans le récipient nous a permis de calculer le volume externe de la bombe, en négligeant les volumes de la feuille d'aluminium et du film plastique. Puis, nous avons répété l'opération sur la bombe seule afin de calculer le volume de la bombe sans les fractures. Celle-ci a d'abord été saturée en eau, puis sa surface a été essuyée afin d'enlever l'eau présente en surplus et la bombe a été ré-immersée et le changement de niveau d'eau a été noté. La différence entre les deux volumes calculés donne le volume des fractures sur la surface de la bombe. Chaque mesure a été réitérée trois fois afin d'évaluer la répétitivité de la méthode. L'erreur sur le volume a été propagée en considérant une erreur de $\pm 0,5$ mm sur la lecture du niveau d'eau dans le récipient.

V.2.4 Caractéristiques des fractures et de la bordure

Nous avons mesuré la profondeur des fractures sur toute la surface de chaque bombe en plaçant une règle au milieu de la fracture et en mesurant la distance entre le fond de la fracture et son intersection avec la surface de la bordure ($\pm 0,5$ mm ; moyenne de 10 mesures). La largeur des fractures a été mesurée par analyse d'images : pour chaque bombe, de 50 à 130 segments ont été tracés perpendiculairement à la direction de la fracture entre les bords de deux polygones, et ont ensuite été mesurés à l'aide du programme ImageJ (Figure 96). Ces deux paramètres (largeur et profondeur des fractures) ont été divisés par le diamètre de la bombe, afin de tenir compte de leur dépendance au volume de la bombe. La surface de chaque

polygone formé par les intersections des fractures a aussi été quantifiée par analyse d'images, à l'aide des logiciels Adobe Photoshop et ImageJ (Figure 96), et en considérant la bombe plane sur la surface de la photographie. De la même façon, la surface de ces polygones dépendant du volume de la bombe, elle a été divisée par la surface externe de la bombe. L'épaisseur moyenne de la bordure de chaque bombe a été mesurée à l'aide d'une règle ($\pm 0,5$ mm ; moyenne de 10 mesures), directement sur le terrain pour les plus grosses bombes et après découpe pour les bombes plus petites, analysées en laboratoire.

Figure 96. Mesures des largeurs des fractures (a) ainsi que du nombre de côtés (b) et de la surface (c) des polygones qu'elles créent (bombe BCP42).



V.2.5 Vésicularité, distribution de taille des vésicules

Les vésicularités isolées et connectées ont été mesurées sur 29 bombes au total à l'aide d'un pycnomètre à hélium Multivolume 1305 et la méthode de Formenti et Druitt (2003) détaillée dans le Chapitre 3 de ce manuscrit. Les vésicularités ont été déterminées séparément sur les intérieurs (30 mesures) et sur les bordures (22 mesures) lorsque cela a été possible. Hormis pour la bombe BCP1 pour laquelle nous avons réussi à couper un cube dans la croûte et ainsi évaluer les porosités isolée et connectée, la vésicularité obtenue pour les autres bordures est une vésicularité totale, les fragments utilisés étant irréguliers et recouverts d'une fine couche de vernis afin d'empêcher l'hélium d'entrer dans l'échantillon. Comme nous l'avons vu dans le Chapitre 3, des distributions de tailles des vésicules ont été réalisées à la fois dans la bordure et dans l'intérieur de deux bombes en croûte de pain qui représentent deux extrêmes dans les textures observées.

V.2.6 Teneurs en eau des verres résiduels

Les teneurs en eau dans les verres de 4 intérieurs et 3 bordures de bombes en croûte de pain ont été mesurées par microspectrométrie Raman comme détaillé dans le Chapitre 6 de ce manuscrit. Le faible nombre de données est lié à la grande difficulté à trouver des plages de verre homogène ne contenant pas de microlites de plagioclase ou de magnétite. Les teneurs en

eau des verres matriciels de quatre bombes en croûte de pain ont été mesurées par Burgisser et al. (soumis), sur la même série d'échantillons (mesures séparées sur la bordure et l'intérieur).

V.3. Résultats

V.3.1 Observations texturales

V.3.1.a *Observations macroscopiques*

Les bombes observées présentent des tailles s'étalant de moins de 10 cm à plus de 1 m de diamètre et montrent des textures très variables et des surfaces angulaires, prismatiques. Aucune relation entre la texture de l'échantillon et son volume apparent n'a été observée sur le terrain. Nous avons donc ensuite classé toutes les bombes dans quatre groupes texturaux, dont les caractéristiques de la croûte ont été détaillées précédemment (cf. § V.2.2).

A première vue, l'intérieur des bombes en croûte de pain ressemble beaucoup aux ponces observées et détaillées dans le Chapitre 3, avec un aspect gris foncé à gris clair et la présence de nombreuses vésicules de tailles différentes. La teinte de l'intérieur s'éclaircit avec la baisse de densité apparente, les bombes du groupe G1 ayant un intérieur gris foncé alors que les bombes du groupe G4 présentent un intérieur gris très clair voire blanc (Figure 95). L'intérieur des bombes comporte de nombreux phénocristaux d'amphiboles pluri-millimétriques dont beaucoup sont fracturés. Comme détaillé dans le Chapitre 3, les fractures de phénocristaux les plus abondantes forment des pores pseudo-sphériques sur les parois desquels on distingue des fragments d'amphiboles plaqués, suggérant une fracturation de façon isotrope. Une foliation est visible dans trois bombes (Figure 97) et semble affecter seulement les bombes des groupes G3 et G4. Lorsque cette foliation existe, les fractures de surface sont parallèles au plan de foliation (Figure 97).

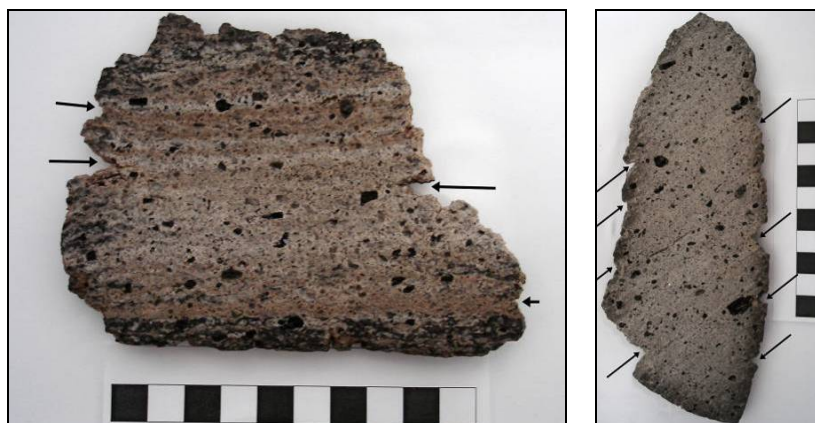


Figure 97. Alignement des fractures de surface parallèlement au plan de foliation dans deux bombes en croûte de pain du groupe G3. Pour l'échelle, chaque carré blanc ou noir représente 1 cm.

Certaines des bombes en croûte de pain sur le terrain présentaient des évidences d'une deuxième (voire troisième) génération de fractures, dont les caractéristiques étaient différentes de la première génération ; les fractures postérieures étant toujours plus fines et la bordure plus vésiculée que la croûte précédemment formée (Figure 98a). La présence de multiples générations de bordures et de fractures est plus courante sur les bombes volumineuses comme BCP19 que sur les bombes plus petites, la probabilité de chocs avec d'autres clastes étant liée au volume de la bombe. Nous avons aussi observé une bombe (BCP10, Figure 98b) présentant une large fracture avec des évidences de déformation ductile, semblable à une torsion. De part et d'autre de cette fracture, la texture de la surface était très similaire à celle du reste de la bombe, suggérant que le choc ayant produit cette fracture et la torsion associée ont eu lieu avant l'acquisition complète de la fracturation et de la bordure.

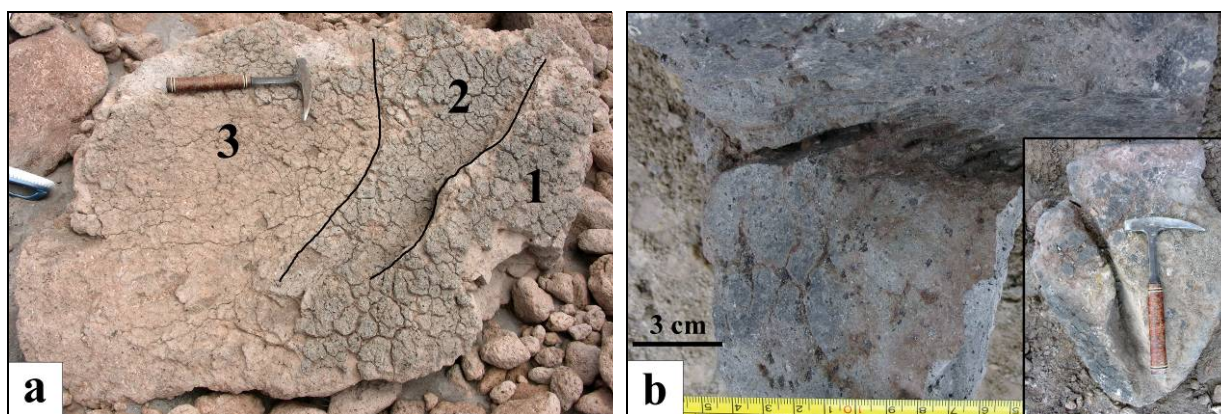


Figure 98. a) Trois générations de fractures différentes dans la bombe BCP19 qui constitue aussi la plus grande bombe observée sur le terrain (> 1 m). Les trois textures de surface différentes sont séparées par des grandes fractures traversant l'échantillon (marquée par des traits noirs) qui montrent que celui-ci a subi des chocs durant son transport ou lors de l'impact avec le sol. La troisième génération de fractures montre une texture de type G3 alors que les deux premières sont du type G2. b) Bombe BCP10 caractérisée par une grande fracture présentant des signes de déformation ductile.

V.3.1.b Observations microscopiques

Des profils d'images ont été réalisés au MEB depuis la bordure vers le cœur de plusieurs bombes, afin d'évaluer la transition à l'échelle microscopique entre les deux textures (Figure 99). Pour les bombes des groupes G1 et G2, la transition entre la bordure dense et l'intérieur plus vésiculé est assez nette, même si les zones denses semblent parfois pénétrer vers le cœur de la bombe et inversement (Figure 99). Pour les bombes types G3 et G4 il est assez difficile de faire la différence entre l'intérieur et la croûte, même d'un point de vue microscopique, la transition étant beaucoup plus diffuse que dans les bombes de type G1 ou G2 (Figure 99).

Les bordures des bombes de type G1 et G2 sont caractérisées par la présence de zones totalement denses dans lesquelles on ne distingue aucune vésicule (Figure 100a), tandis que d'autres zones présentent des bulles isolées dont la taille ne dépasse pas 20-30 μm (Figure 100b) ainsi que quelques rares vésicules angulaires de plusieurs centaines de microns, toujours associées aux phénocristaux d'amphiboles (Figure 99). Les bordures des bombes des groupes G3 et G4 sont beaucoup plus vésiculées que celles des bombes G1 et G2 (Figure 99, Figure 100a et c, comparer aussi *coarsely* et *finely breadcrusted* dans Giachetti et al. soumis), avec la présence de nombreuses petites bulles isolées et des fractures angulaires liées aux cristaux d'amphiboles. Dans toutes les bordures, les vésicules isolées semblent parfois s'arranger en forme de chapelets de bulles autour des phénocristaux (Figure 99).

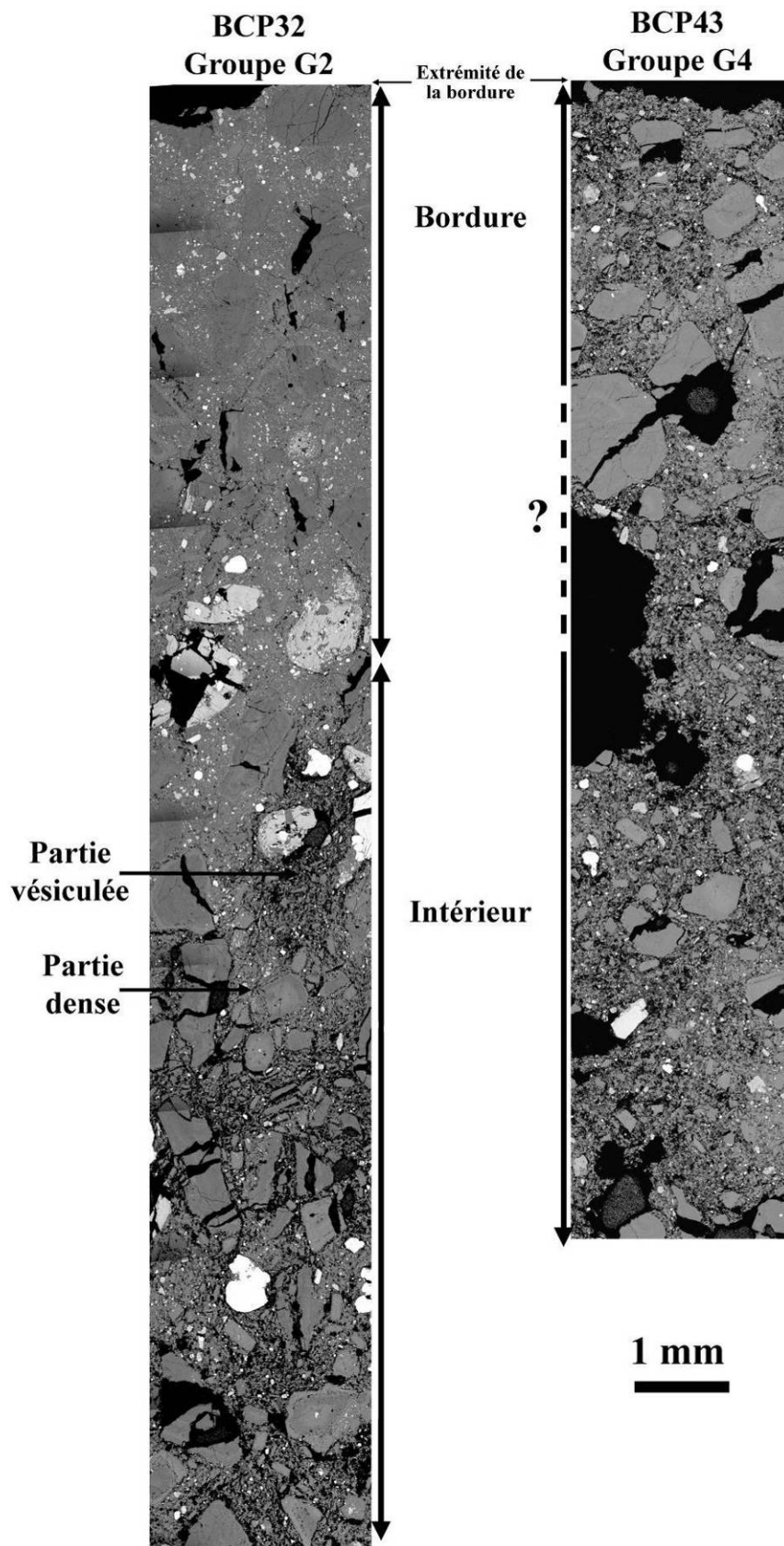


Figure 99. Profils depuis la bordure vers l'intérieur de deux bombes en croûte de pain, caractéristiques des groupes G2 et G4.

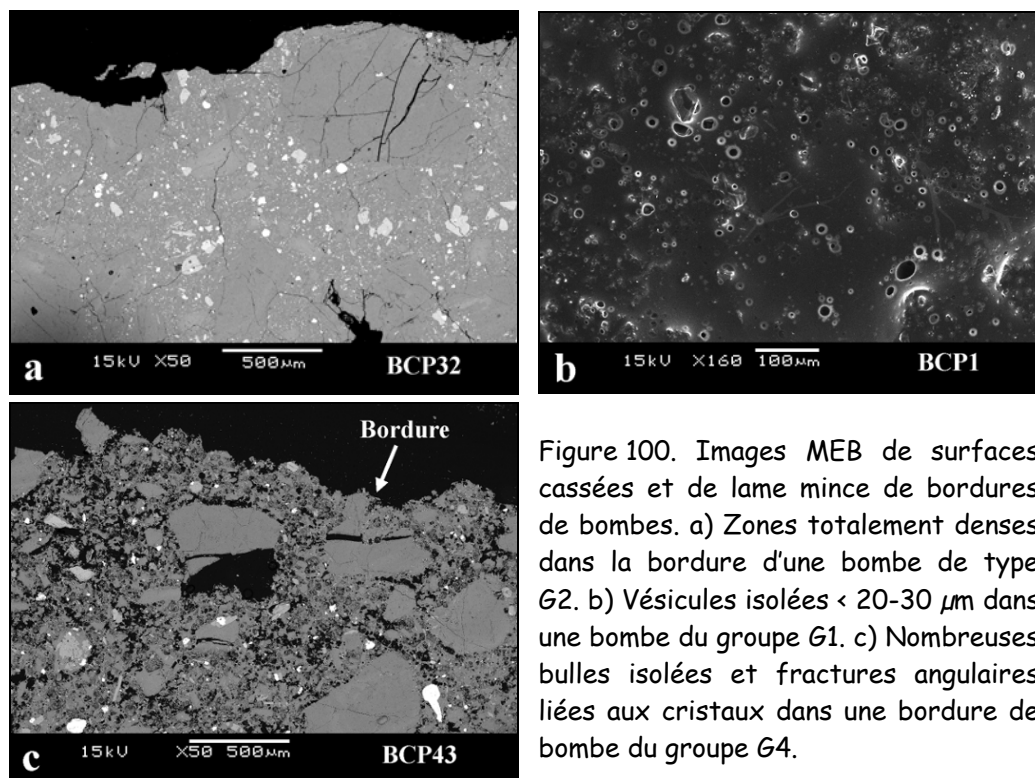


Figure 100. Images MEB de surfaces cassées et de lame mince de bordures de bombes. a) Zones totalement denses dans la bordure d'une bombe de type G2. b) Vésicules isolées < 20-30 μm dans une bombe du groupe G1. c) Nombreuses bulles isolées et fractures angulaires liées aux cristaux dans une bordure de bombe du groupe G4.

Visuellement, la vésicularité des intérieurs des bombes de tous les groupes augmente des groupes G1 à G4 (Figure 95). On identifie dans tous les intérieurs les deux mêmes types de vésicules que dans les bordures : de larges pores angulaires de plusieurs centaines de microns et toujours liés aux phénocristaux, et des petites vésicules < 20-30 μm . Cependant, les deux types de vésicules figurent en plus grand nombre que dans les bordures associées. Si les petites vésicules sont souvent isolées dans les intérieurs des bombes G1 ou G2 (Figure 101a), le nombre de vésicules connectées semble être plus important dans les bombes G3 et G4 (Figure 101b). Enfin, il existe dans les intérieurs des bombes de type G4, quelques grandes vésicules non liées aux phénocristaux d'amphibole et qui ont été interprétées dans les ponces comme étant des vésicules pré-explosives (Chapitre 3). A l'échelle microscopique il est d'ailleurs parfois difficile de distinguer l'intérieur d'une bombe G4 d'une ponce.

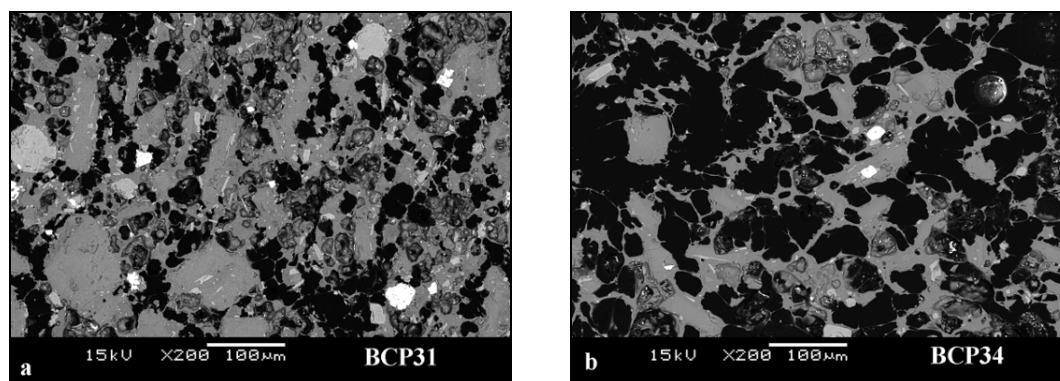


Figure 101. a), b) Images en électrons rétrodiffusés d'intérieurs de bombes en croûte de pain de type G1 et G4 respectivement. Ces deux images sont à la même échelle pour comparaison.

Tableau 12. Données issues des diverses mesures texturales effectuées sur les bombes en croûte de pain classées en fonction du groupe textural et par vésicularité intérieure croissante.

Groupe textural	Bombe	Vésicularité totale intérieure (%vol)	Connectivité moyenne (%vol)	Volume total bombe (cm ³)	Volume fractures mesuré (cm ³)	Pourcentage volumique de fractures (%vol)	Volume fractures théorique (cm ³)	Vésicularité totale bordure (%vol)	Epaisseur bordure (mm)	Largeur fractures (mm)	Profondeur fractures (mm)
(G1)	BCP40	21,9 (1,9)	89,5	-	-	-	-	0,8 (2,0)	5,0	-	-
	BCP10	26,2 (1,5)	90,2	-	-	-	-	-	3,5	1,6	6,7
	BCP13	26,7 (1,4)	91,0	-	-	-	-	-	1,5	-	10
	BCP39	41,2 (1,3)	81,0	569 (18)	44 (5)	7,8 (0,9)	56 (9)	5,5 (1,9)	7,5	1,3	7,2
	BCP1	32,9 (1,5)	67,2	-	-	-	-	7,5 (1,9)	10,1	-	-
(G2)	BCP41	37,8 (1,3)	86,6	3266 (27)	292 (42)	8,9 (1,3)	233 (30)	1,8 (2,0)	9,3	8,1	14,8
	BCP31	38,1 (1,4)	79,8	1087 (18)	107 (1)	9,8 (0,1)	108 (15)	1,5 (2,0)	9,4	3,3	12,6
	BCP2a	38,8 (0,9)	71,2	-	-	-	-	2,4 (2,0)	-	-	-
	BCP32	40,3 (1,5)	81,0	1556 (18)	205 (9)	13,2 (0,6)	166 (21)	1,1 (2,1)	10,3	4,7	12,2
	BCP23	43,5 (1,5)	81,1	-	-	-	-	-	-	-	-
	BCP16	45,9 (1,1)	95,0	-	-	-	-	-	7,8	-	-
	BCP12	44,1 (1,7)	82,9	-	-	-	-	9,6 (1,8)	6,5	-	17
	BCP37	44,8 (1,4)	85,7	725 (18)	71 (18)	9,8 (2,5)	63 (11)	9,4 (1,8)	6,5	3,7	9,6
(G3)	BCP33	45,5 (1,2)	81,3	1200 (18)	172 (10)	14,4 (0,9)	146 (18)	5,1 (1,9)	10,0	3,9	12,0
	BCP14	46,8 (1,3)	84,6	-	-	-	-	6,0 (1,9)	8,0	-	-
	BCP38	47,7 (0,8)	84,5	1425 (18)	113 (27)	7,9 (1,9)	79 (15)	5,8 (1,9)	4,3	3,6	8,1
	BCP20	47,8 (1,1)	81,1	-	-	-	-	-	-	-	-
	BCP11	47,9 (1,1)	86,6	-	-	-	-	5,8 (2,0)	3,5	-	-
	BCP15	48,7 (1,1)	92,1	-	-	-	-	-	3,6	-	-
	BCP35	49,0 (1,0)	84,2	924 (18)	83 (10)	9,0 (1,1)	123 (16)	9,6 (1,9)	10,7	4,4	10,2
	BCP42	50,0 (1,7)	86,6	3713 (27)	292 (42)	13,3 (0,1)	302 (44)	5,0 (2,0)	7,8	6,9	17,3
	BCP17	56,7 (1,1)	83,1	-	-	-	-	24,8 (1,6)	-	-	-
	BCP21	61,9 (1,0)	87,6	-	-	-	-	12,5 (1,8)	-	-	-
(G4)	BCP24	62,8 (0,8)	87,9	-	-	-	-	9,0 (1,9)	-	-	-
	BCP43	48,8 (1,1)	86,9	3284 (27)	493 (55)	15,0 (1,7)	157 (26)	12,1 (1,8)	4,8	1,7	10,1
	BCP36	49,9 (1,0)	74,6	1093 (18)	103 (13)	9,5 (1,2)	39 (9)	18,1 (1,7)	2,8	2,0	9,0
	BCP18	50,5 (1,0)	83,9	-	-	-	-	-	-	-	-
	BCP34	51,2 (1,6)	87,6	1025 (18)	109 (4)	10,7 (0,4)	109 (16)	7,5 (1,9)	7,1	1,5	11,4
	BCP22	65,0 (0,9)	83,6	-	-	-	-	-	-	-	-

V.3.2 Mesures texturales

Les données correspondant aux diverses mesures texturales des échantillons figurent dans le Tableau 12 (volumes, porosités, épaisseurs, etc.).

V.3.2.a Fractures de surface

Le volume des fractures représente de ~8 à plus de 14% du volume de la bombe, une légère augmentation du volume des fractures du groupe G1 au groupe G4 étant observée (Figure 102). La largeur et la profondeur des fractures normalisées au diamètre augmentent en moyenne du groupe G1 au groupe G2 puis diminuent du groupe G2 au groupe G4 (Figure 102). La surface moyenne des polygones formés par les intersections des fractures augmente du groupe G1 à G3 (3,2 à 8,3 cm²) et est plus faible pour le groupe G4 (~3,4 cm², Figure 102). Ces données confirment l'observation selon laquelle les fractures des groupes G3 et G4 sont plus superficielles, plus étroites mais plus nombreuses (polygones plus petits) que celles des groupes G1 et G2, permettant d'expliquer le volume plus important qu'elles représentent, malgré leur profondeur et leur largeur moins élevées.

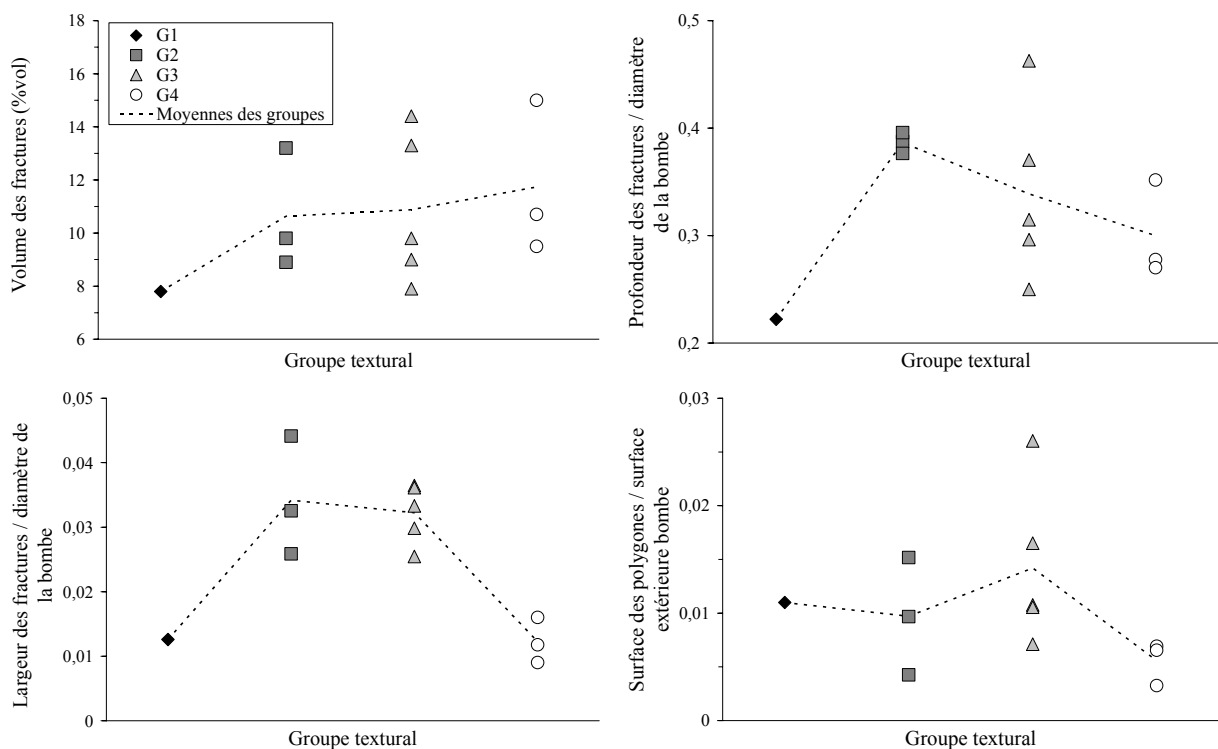


Figure 102. Volume, largeur et profondeur des fractures de surface des bombes en croûte de pain en fonction du groupe textural auquel elles appartiennent.

V.3.2.b *Bordure des bombes*

L'épaisseur de la bordure des bombes varie entre 1,5 et 10,7 mm d'épaisseur (Tableau 12). Elle augmente des bombes de types G1 à G2 (4,4 à 9,2 mm) puis diminue vers le groupe G4 (4,9 mm ; Figure 103a). Sa vésicularité varie de 0,8 à 24,8 %vol et augmente du groupe G1 au groupe G4, confirmant les observations microscopiques (Figure 103b). De plus, la vésicularité de la bordure est globalement inversement proportionnelle à son épaisseur ; plus elle est épaisse, plus elle est dense (Figure 103c). Les mesures des vésicularités connectée et isolée dans la bordure de la bombe en croûte de pain BCP1 montre que la majorité des vésicules de la croûte sont isolées. Les distributions de taille des vésicules effectuées dans les bordures des bombes BCP1 (G2) et BCP43 (G4) montrent quantitativement l'existence de deux populations de vésicules : une population de petites vésicules isolées dont le mode varie de 10 μm (G1) à 14 μm (G4) et qui représente 15 à 37 vol% de la vésicularité totale de la croûte, et une population de vésicules plus larges (455 à 1273 μm de diamètre en moyenne) représentant jusqu'à 85%vol de la vésicularité, et qui est toujours liée à la fracture de phénocristaux d'amphiboles (cf. Chapitre 3 ; Giachetti et al. soumis). La densité numérique de vésicules est plus élevée dans la bordure plus vésiculée de la bombe de type G4 ($\sim 26 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$) que dans celle plus dense de la bombe G1 ($\sim 10 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$). Cependant, comme nous l'avons vu précédemment, la bombe de type G1 présente aussi des parties de la croûte dépourvues de toute bulle.

Les trois mesures par microspectrométrie Raman effectuées dans des bordures de bombes de type G2 et G3 montrent que la teneur en eau dans le verre résiduel ne dépasse pas $0,8 \pm 0,1$ %pds (cf. Chapitre 6). Ces teneurs sont cohérentes avec les quatre mesures effectuées par Burgisser et al. (soumis) qui varient jusqu'à $1,0 \pm 0,2$ %pds au maximum. Nous n'observons pas de corrélation entre l'épaisseur de la bordure des bombes et leur teneur en eau dans le verre matriciel.

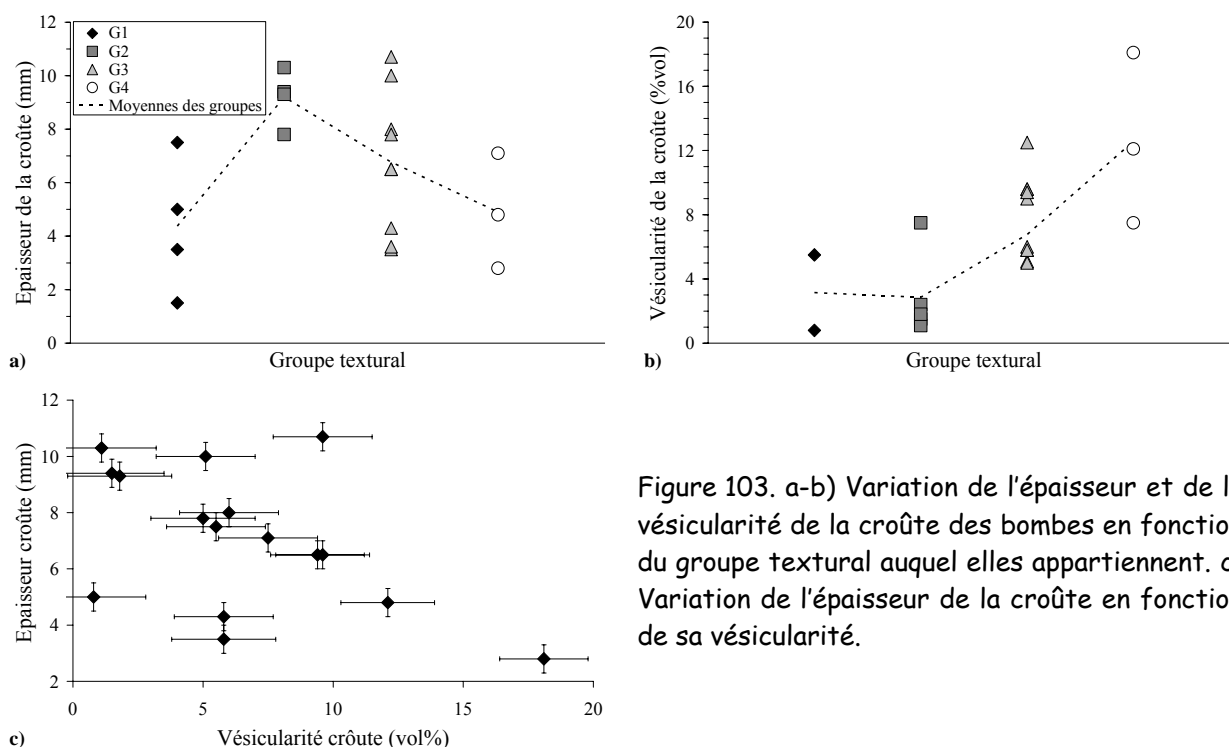


Figure 103. a-b) Variation de l'épaisseur et de la vésicularité de la croûte des bombes en fonction du groupe textural auquel elles appartiennent. c) Variation de l'épaisseur de la croûte en fonction de sa vésicularité.

V.3.2.c Intérieur des bombes

L'intérieur des bombes en croûte de pain présente une vésicularité variant de ~22 à 65%vol et montre aussi une corrélation avec le groupe textural (Figure 104a), la vésicularité étant plus faible dans le groupe G1 (22 à 41 %vol) que dans le groupe G4 (49 à 65 %vol). De plus, il existe une corrélation positive entre les vésicularités des bordures des bombes et celles des intérieurs (Figure 104). Le pourcentage de vésicules connectées est élevé dans les intérieurs de toutes les bombes (~84 %vol) et ne montre pas de variation significative en fonction du groupe textural. En revanche, cette connectivité est plus faible en moyenne que celle mesurée dans les ponces issues des mêmes explosions (~93 %vol ; cf. Chapitre 3). Les distributions de taille des vésicules des intérieurs sont bimodales (Chapitre 3 ; Giachetti et al. soumis), présentant une population de petites vésicules isolées dont le diamètre moyen et le pourcentage volumique relatif (20 μm ; 62-71 %vol) sont plus élevés que ceux mesurés dans les bordures associées (10-14 μm ; 15-37 %vol). Comme dans les bordures, on retrouve une population de grandes vésicules, invariablement liées aux phénocristaux d'amphiboles et qui représente 20 à 38 %vol de la vésicularité totale, pour un diamètre moyen de 1221 à 2299 μm . Dans la bombe du groupe G4, on observe aussi la présence d'une population de vésicules de tailles intermédiaire (mode à ~140 μm) qui représente ~9 %vol de la vésicularité totale.

Les 4 mesures de teneur en eau effectuées sur les intérieurs montrent que celles-ci ne dépassent pas $1,7 \pm 0,1$ %pds dans le verre (cf. Chapitre 6). Ces données sont cohérentes avec

le maximum de $1,6 \pm 0,4$ %pds d'eau mesuré par Burgisser et al. (soumis) dans les verres d'intérieurs de bombes en croûte de pain issues des mêmes explosions volcaniennes. Il semble ne pas exister de différence sensible entre les teneurs en eau dans les verres matriciels de la bordure et de l'intérieur des bombes (Chapitre 6 ; Burgisser et al. soumis).

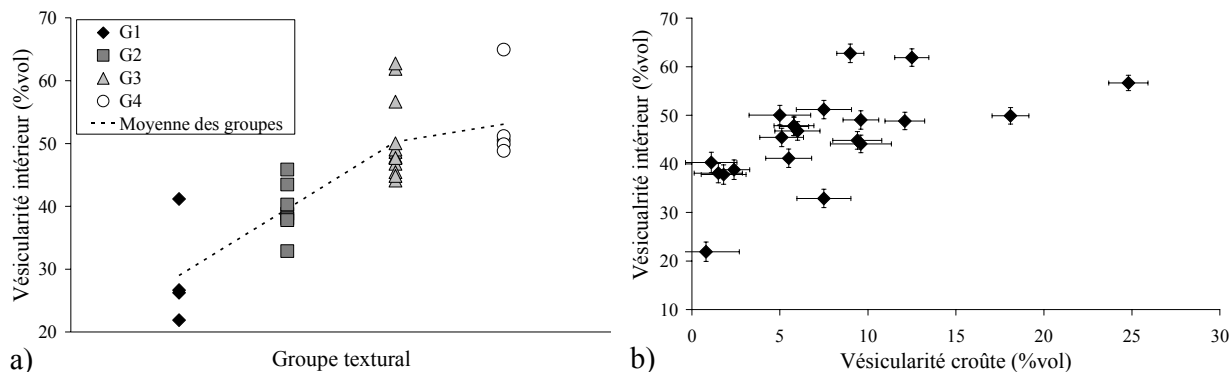


Figure 104. a) Variation de la porosité totale de l'intérieur des bombes en croûte de pain déterminée par pycnométrie à hélium, en fonction du groupe textural. b) Variation de la vésicularité de l'intérieur en fonction de la vésicularité de la croûte.

V.4. Discussion:

Dans la discussion suivante nous utilisons à la fois les relations qui existent entre les bordures des bombes et leurs intérieurs respectifs, mais aussi les différences entre les quatre types texturaux définis précédemment et enfin les points communs et différences entre les bombes et les ponces, pour obtenir des informations sur les mécanismes de formation des bordures et des fractures et déterminer l'origine de toutes les textures observées.

V.4.1 Nature et origine de la vésicularité des bombes

Dans les bordures et les intérieurs des bombes en croûte de pain il existe majoritairement deux types de vésicules : de petites vésicules isolées ($< 30\text{-}40\text{ }\mu\text{m}$) formées par nucléation hétérogène et croissance par décompression de bulles de gaz, et de grandes vésicules angulaires ($500\text{-}2500\text{ }\mu\text{m}$) formées par la fracturation de phénocristaux d'amphiboles. Dans les intérieurs des bombes de type G4 on trouve également des vésicules de taille intermédiaire ($80\text{-}100\text{ }\mu\text{m}$) formées par la croissance et la coalescence des bulles plus petites (BCP43 ; cf. Chapitre 3). La présence de zones totalement denses dans la bordure des bombes de type G1 ou G2 nous a fait conclure précédemment que toutes ces vésicules étaient syn-explosives et post-fragmentation (Chapitre 3).

Les vésicules provenant de la fracturation des amphiboles représentent 10 à 14 %vol des intérieurs des bombes en croûte de pain alors que ce type de vésicules est présent en plus faible proportion (5 à 7 %vol) dans les bordures. La faible présence de ces vésicules

angulaires dans les bordures alors qu'elles sont largement présentes dans les intérieurs, ainsi que leur caractère fréquemment isotropique, et la présence de fines fibres de verre reliant les fragments d'amphibole (cf. Figure 64a ; Giachetti et al. soumis), indiquent que la fracturation des phénocristaux d'amphiboles a eu lieu post-fragmentation et à la fois pendant et après la formation de la bordure dense. Elles peuvent provenir : (1) de l'explosion d'inclusions de liquides lors de la décompression ou, (2) de l'accommodation de façon cassante par les phénocristaux de la déformation locale due à la nucléation et croissance des petites vésicules. La présence de larges vésicules sphériques sur les bordures desquelles on trouve des fragments d'amphiboles plaqués favorise l'origine (1). En revanche, la présence de fractures parallèles ou perpendiculaires au sens d'allongement du phénocristal s'explique plus facilement par une expansion locale dans une direction (2), due à la croissance de petites vésicules isolées autour du cristal. Nous pensons que les deux processus de formation de ces grands vides angulaires se produisent dans les bombes.

V.4.2 Origine de la fracturation de la surface des bombes

La fracturation de surface visible dans les bombes en croûte de pain peut provenir de trois mécanismes principaux : (1) l'expansion de l'intérieur fracturant la bordure rigide déjà formée, (2) la contraction thermique de la croûte ou encore, (3) l'impact de la bombe avec le sol ou avec d'autres projectiles lors du trajet dans l'atmosphère. Il est fort probable que les trois mécanismes contribuent à la formation des fractures. Cependant, l'impact des bombes sur le sol devrait créer des fractures radiales sur la surface, non uniformes sur tout le pourtour de la bombe. Nous n'avons pas observé ce type de fractures dans nos échantillons indiquant que (3) n'est pas le mécanisme principal qui crée les fractures de surface.

Soit une bombe de volume total final V_f (avec les fractures) et dont la bordure d'épaisseur E possède une vésicularité ϕ_i qui représente la vésicularité initiale de la bombe juste avant la trempe (Figure 105). Son intérieur possède une porosité finale (après expansion), égale à ϕ_f . L'expansion post-fragmentation ($\Delta\phi = \phi_f - \phi_i$) des bombes est assez importante, variant de ~21 %vol à ~54 %vol, étant plus faible dans les bombes des groupes G1 et G4 que dans celles des groupes G2 et G3. Il est possible que les fractures visibles sur la surface des bombes en croûte de pain soient uniquement le résultat de l'accommodation cassante par la bordure de la déformation ductile liée à l'expansion de l'intérieur. Pour tester cette hypothèse, nous avons comparé le volume de fractures mesuré réellement sur chaque bombe au volume théorique de fractures sur une sphère de même volume que la bombe, dont

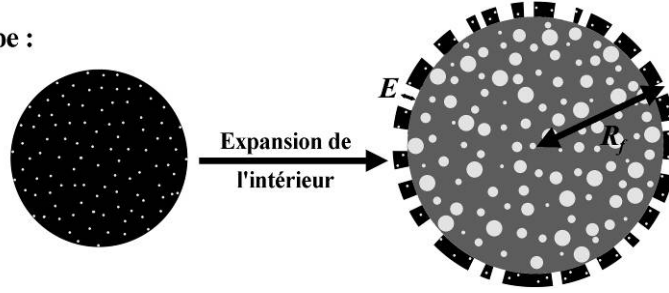
l'expansion de l'intérieur provoque la fracturation d'une bordure rigide d'épaisseur identique à celle mesurée.

Juste avant la trempe :

Sphère volume V_i

Rayon R_i

Porosité ϕ_i



Bombe échantillonnée :

Sphère volume V_f

Rayon R_f

Porosité intérieure ϕ_f

Porosité bordure ϕ_i

Epaisseur bordure E

Figure 105. Modèle d'expansion utilisé pour le calcul du volume théorique de fractures.

Si on assimile cette bombe à une sphère, son rayon est défini par :

$$R_f = \left(\frac{3V_f}{4\pi} \right)^{1/3} \quad [51]$$

Considérant la bordure d'épaisseur moyenne E , le volume de l'intérieur expansé de la bombe est alors égal à :

$$V_{int f} = \frac{4\pi}{3} (R_f - E)^3 \quad [52]$$

Si on considère que ce volume intérieur de la bombe avait une porosité initiale égale à celle de la bordure (ϕ_i), le volume initial de l'intérieur est déterminé par :

$$V_{int i} = \frac{4\pi}{3} (R_f - E)^3 \times \left(\frac{100 - \phi_f}{100 - \phi_i} \right) \quad [53]$$

Où ϕ_i et ϕ_f sont exprimés en %vol.

Puisque le volume de la bordure n'a pas évolué depuis la trempe, le rayon initial de la bombe était de :

$$R_i = E + (R_f - E) \times \sqrt[3]{\frac{100 - \phi_f}{100 - \phi_i}} \quad [54]$$

D'où le volume de la bordure (initial et final) :

$$V_{bor} = \frac{4\pi}{3} R_i^3 - V_{int i} \quad [55]$$

Le volume théorique de fractures est alors calculé simplement en soustrayant au volume final les volumes de bordure et de l'intérieur expansé, soit :

$$V_{fract} = V_f - V_{bor} - V_{int f} \quad [56]$$

Nous avons donc calculé le volume théorique de fracture pour chaque bombe (Figure 106) en fonction de V_f , E , ϕ_i et ϕ_f et à l'aide des équations [51] à [56]. Ce volume a ensuite été comparé au volume réellement mesuré par la technique d'immersion détaillée précédemment. L'erreur sur le volume théorique est de ± 6 à $\pm 44 \text{ cm}^3$ selon les échantillons et est calculée par propagation des erreurs liées aux mesures de V_f , E , ϕ_i et ϕ_f .

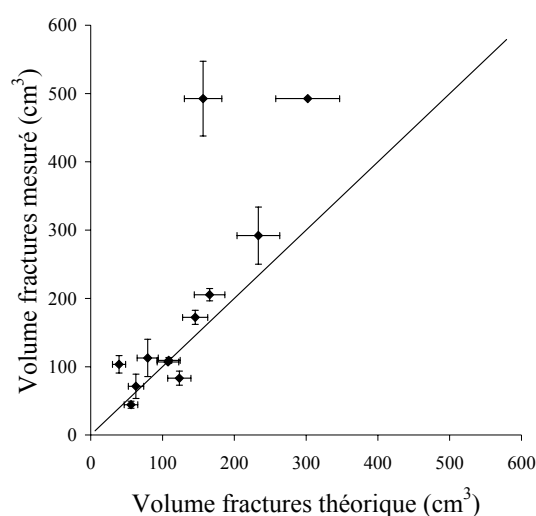


Figure 106. Comparaisons entre les volumes de fractures mesurés pour les bombes et les volumes théoriques correspondant à l'expansion de l'intérieur d'une sphère provoquant la fracturation de la bordure extérieure. La majorité de l'expansion peut être attribuée à la simple expansion de l'intérieur depuis une vésicularité ϕ_i jusqu'à une vésicularité ϕ_f . Deux bombes s'écartent des valeurs théoriques liées à l'expansion de l'intérieur et présentent un volume de fractures dont seule une partie peut être expliquée par l'inflation de l'intérieur.

La Figure 106 montre un bon accord entre les volumes de fractures mesurés et théoriques, le volume de fractures observé étant généralement un peu plus élevé que le volume théorique. Pour 10 des 12 bombes, la présence de fractures sur la surface extérieure peut s'expliquer simplement par l'expansion de l'intérieur venant craqueler la bordure rigide. Nous pensons donc que la fracturation de la croûte est en grande partie liée à la simple expansion de l'intérieur depuis une vésicularité ϕ_i jusqu'à une vésicularité ϕ_f .

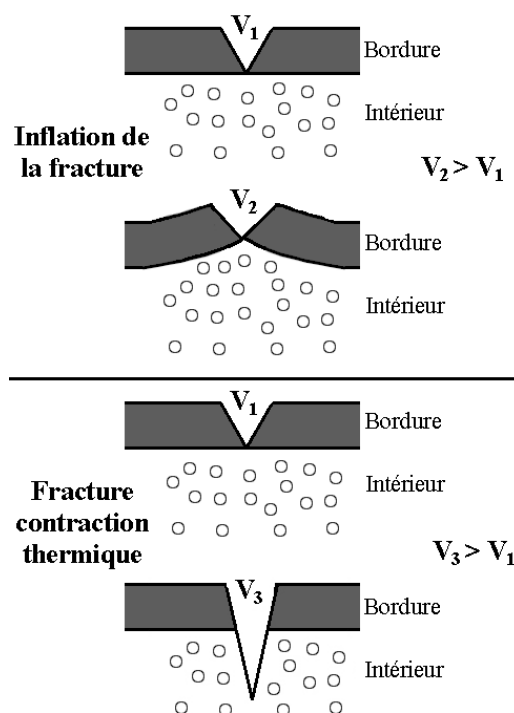
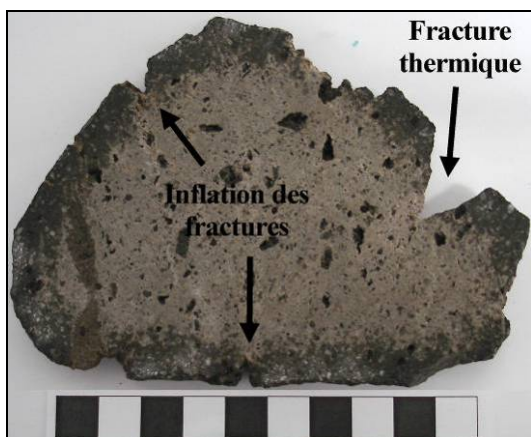
Deux bombes présentent cependant un volume de fractures de surface dont seul 32 à 38% peut être attribué à l'expansion de l'intérieur de la bombe (Figure 106, points s'écartant fortement de la droite 1 : 1), impliquant d'autres mécanismes de fracturation qui provoquent l'augmentation du volume de fractures existant.

Nous avons remarqué que certains des polygones de surface des bombes présentait une forme concave vers l'extérieur, élargissant la fracture et augmentant donc son volume. Cette forme concave vers l'extérieur de la bordure dense est bien visible en coupe (Figure 107). Un processus pouvant expliquer cette observation est que lors de l'expansion de l'intérieur, la

fracturation de la croûte engendre des zones de faiblesse dans la bordure. L'expansion (vésiculation) qui est limitée par la rigidité de la croûte est alors localement dirigée vers ces zones de faiblesse, créant à cet endroit une inflation de la croûte. Ce processus a été invoqué par Wright et al. (2007) pour expliquer le même type d'observations. Le volume lié à l'occurrence de ce processus peut donc être indirectement relié à l'expansion de l'intérieur, mais est difficile à prendre en compte quantitativement dans le modèle d'expansion théorique présenté précédemment.

Certaines fractures pénètrent dans l'intérieur de la bombe et sont plus profondes que la croûte n'est épaisse (Figure 107). Le Tableau 12 montre d'ailleurs, qu'en moyenne, la profondeur des fractures est plus importante que l'épaisseur de la croûte. Si ces fractures avaient été créées totalement par expansion de l'intérieur, il y aurait une différence de vésicularité au-dessous et au-dessus de la fracture, ce qui n'est pas visible sur les échantillons. Ceci montre que ce type de fracture s'est propagé vers l'intérieur de la bombe et que donc l'expansion de l'intérieur était terminée avant la fin de la fracturation. Comme Wright et al. (2007), nous pensons que ce type de fractures peut être lié à la contraction thermique.

Figure 107. Coupe dans une bombe en croûte de pain du type G2 (BCP31) illustrant la présence à la fois d'une fracture liée à la contraction thermique et d'une inflation de certaines fractures formées, pour lesquelles des schémas explicatifs sont fournis.



Sur certaines bombes, il existe deux séries bien distinctes de fractures qui se croisent perpendiculairement, formant des polygones rectangulaires (Figure 108a, b). Ce type de fracturation est observé surtout dans les bombes avec une bordure épaisse (groupes G2 et G3). Les fractures les plus importantes sont souvent liées à la foliation comme nous l'avons vu précédemment (Figure 97). En effet, dans les bombes présentant une foliation interne

marquée, la fracturation des bordures parallèlement à la foliation peut s'expliquer par une plus grande rigidité des niveaux plus riches en cristaux et donc une fracturation qui se fait dans un premier temps parallèlement à ces niveaux, et donc dans la direction de foliation. Des fractures secondaires, moins profondes, sont perpendiculaires aux premières fractures car elles se propagent perpendiculairement à la direction de contrainte maximale qui est elle-même parallèle à la direction des premières fractures (Müller 1998).

Cependant, certaines bombes présentant ce type de fracturation perpendiculaire n'ont pas de foliation bien marquée. La double fracturation perpendiculaire peut alors s'expliquer par la forme prismatique des bombes. En effet, dans les coins des bombes prismatiques se produit une radiation de la chaleur dans toutes les directions, ce qui engendre un refroidissement plus rapide et donc une croûte plus épaisse sur les arêtes de la bombe (Figure 108c). Lors de l'expansion de l'intérieur, les fractures dans la bordure vont d'abord se développer parallèlement à la direction de ces zones plus rigides. Les fractures secondaires se propageront ensuite perpendiculairement à cette première famille de fractures. La plus grande rigidité des coins (et donc des angles) permet aussi d'expliquer la préservation de certaines formes prismatiques des bombes observées, même après transport dans les coulées pyroclastiques.

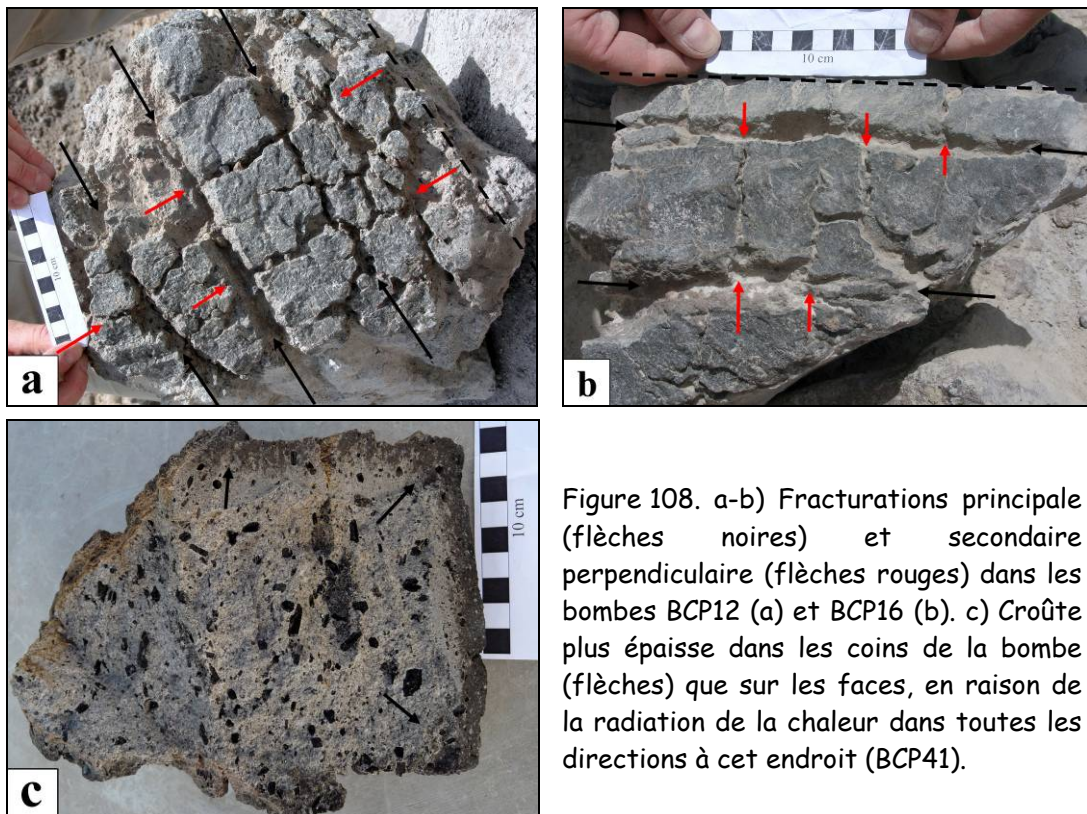


Figure 108. a-b) Fracturations principale (flèches noires) et secondaire perpendiculaire (flèches rouges) dans les bombes BCP12 (a) et BCP16 (b). c) Croûte plus épaisse dans les coins de la bombe (flèches) que sur les faces, en raison de la radiation de la chaleur dans toutes les directions à cet endroit (BCP41).

V.4.3 Limite de l'expansion post-fragmentation

Nous avons montré dans le Chapitre 3 que les petites vésicules isolées syn-explosives croissaient majoritairement par décompression. Ceci semble être confirmé par l'absence de variation systématique des teneurs en eau du verre matriciel entre les bordures et les intérieurs des bombes, malgré les différences significatives de taille moyenne des petites vésicules ($\sim 20 \mu\text{m}$ dans les centres contre $\sim 10\text{-}14 \mu\text{m}$ dans les bordures) et du volume que représente cette population de petites vésicules (22-34 %vol dans les intérieurs contre 1-4 %vol dans les bordures). L'expansion de l'intérieur de la bombe se produit donc tant que le taux de gaz s'échappant hors de la bombe est inférieur au taux d'expansion liée à la décompression du gaz dans ces bulles et à la fracturation des phénocristaux d'amphibole. Le fait qu'on ne retrouve pas d'intérieur de bombe ayant une vésicularité très importante montre que l'intérieur est devenu perméable et a permis au gaz de s'échapper de l'intérieur de la bombe, via les fractures de surface.

Cependant, les intérieurs des bombes en croûte de pain présentent des proportions de vésicules isolées (5 à 32% avec une moyenne de 16% ; Tableau 12) plus importantes que celles observées dans les ponces de ces mêmes explosions vulcaniennes (0 à 15% avec une moyenne de 7% ; cf. Chapitre 3). De plus, les distributions de tailles des vésicules dans les bombes montrent une très faible proportion, voire une absence, de vésicules de taille intermédiaire ($80\text{-}100 \mu\text{m}$; Giachetti et al. soumis) par rapport aux ponces. La coalescence des petites vésicules dans l'intérieur des bombes en croûte de pain est donc limitée par rapport aux ponces et ne se produit que dans les intérieurs des bombes les plus vésiculées (types G4), comme le suggère la comparaison entre les distributions de tailles des vésicules dans les intérieurs de BCP1 (G2) et BCP43 (G4). Cependant, dans les bombes de types G1 et G2, nous avons observé de nombreux réseaux de fractures (Figure 109), reliant parfois les vésicules créées par fracturation des phénocristaux d'amphibole. Ces fractures peuvent avoir été causées aussi par l'expansion de l'intérieur ou lors de l'impact avec le sol. Il est possible que ces réseaux de fractures engendrent une perméabilité suffisante pour permettre au gaz de s'échapper hors du magma et ainsi arrêter l'expansion de l'intérieur dans les bombes les plus superficielles (G1 et G2). Il est à noter que le même type de fractures est visible dans les bombes du Guagua Pichincha (Wright et al. 2007 , leur Figure 8).

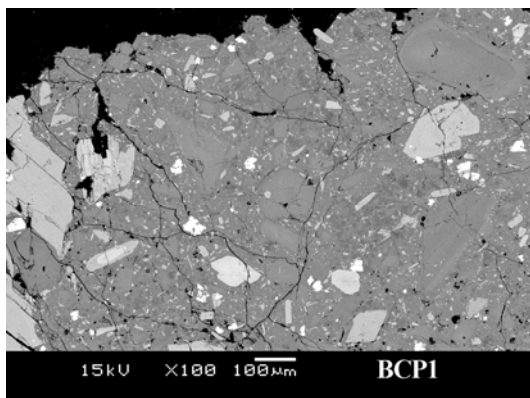


Figure 109. Fractures parcourant une partie de la bordure de la bombe BCP1 (G2). Le réseau de fractures peut expliquer le dégazage de l'intérieur des bombes.

Les bombes les plus évoluées en termes de vésiculation (G4) constituent une transition entre les bombes types G1 et G2 qui présentent une croûte dense et les ponces qui ne présentent ni bordure plus dense, ni fracturation de surface. L'absence de fracturation de surface sur les ponces montre que l'expansion de leur intérieur a été trop faible et donc que soit la vésicularité finale était déjà acquise au moment de la fragmentation, soit l'expansion s'est produite de manière homogène sur tout le volume de l'échantillon. Lors de la décompression, le gaz a donc pu s'échapper hors des ponces de manière très efficace. La perméabilité plus élevée dans les ponces est due à la présence, à la fois de grandes vésicules pré-éruptives formant des chenaux que le dégazage entre deux explosions n'a pas eu le temps de faire disparaître (Chapitre 3), et de vésicules de taille intermédiaire (80-100 μm) formées par la coalescence des petites vésicules. Dans les intérieurs des bombes G4, on observe aussi la présence d'une population de vésicules intermédiaires mais sa proportion par rapport à la vésicularité totale (9 %vol) est moins importante que dans les ponces (25 à 44 %vol ; Chapitre 3). Les grandes vésicules pré-éruptives visibles abondamment dans les ponces sont assez rares dans les intérieurs des bombes G4 mais existent tout de même. Enfin, comme dans les bombes G1 et G2, on observe la présence de fines fractures parcourant l'échantillon. Il est possible que le réseau permettant l'échappement du gaz hors de l'intérieur des bombes G3 et G4 soit formé à la fois par de fines fractures, par des vésicules de taille intermédiaire, et par quelques larges vésicules pré-explosives, constituant ainsi une transition entre les bombes de types G1 et G2 et les ponces. Les bombes de type G3 sont intermédiaires entre les bombes G1 et G2.

V.4.4 Association des bombes en croûte de pain avec les explosions vulcaniennes

Comme nous l'avons vu précédemment, les bombes en croûte de pain constituent une transition entre les échantillons totalement denses et les ponces, et sont confinées dans la partie superficielle du conduit, vers une dizaine de MPa (Burgisser et al. soumis ; Chapitre 6).

Les relations entre les vésicularités des bordures et des intérieurs des bombes provenant des quatre groupes texturaux définis précédemment montrent que les bombes G1 et G2 sont plus superficielles que les bombes G3 et G4, ces dernières possédant des bordures et des intérieurs plus vésiculés. Wright et al. (2007) ont observé les mêmes types de relations stratigraphiques pour les explosions vulcaniennes du Guagua Pichincha en 1999. Juste avant chaque explosion, le conduit du Pichincha était constitué en surface d'échantillons denses et dégazés, puis de bombes possédant une bordure finale épaisse et dense et un intérieur peu vésiculé (nos types G1-G2) et enfin, plus en profondeur, de bombes avec une bordure plus fine et plus vésiculée (notre type G4). La proportion de bombes en croûte de pain dans les dépôts des explosions vulcaniennes semble être plus importante au Pichincha qu'à la Soufrière Hills (Wright et al. 2007), de même que la profondeur maximale d'où elles proviennent (jusqu'à 2-2,8 km au Pichincha, beaucoup plus superficielles à la Soufrière Hills). Ces différences peuvent être expliquées par le temps de repos entre deux explosions successives.

Les explosions vulcaniennes du Guagua Pichincha en décembre 1999 étaient espacées de quelques jours (Wright et al. 2007) alors que l'intervalle de temps moyen entre deux explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills en 1997 n'était que de $\sim 9,5$ h. Il est probable que l'intervalle de temps plus important entre deux explosions vulcaniennes au Pichincha permette un dégazage plus profond dans le conduit, conduisant à la formation d'un magma plus dense, plus en profondeur. Il est alors compréhensible que lors de l'explosion vulcanienne, la proportion de clastes présentant une surface en croûte de pain, c'est-à-dire les clastes initialement assez denses, soit plus importante qu'à la Soufrière Hills. Cet intervalle de temps plus important est peut être lié à la vitesse d'ascension du magma plus lente au Pichincha (proche de $0,5 \text{ cm s}^{-1}$; Wright et al. 2007) qu'à la Soufrière Hills ($\sim 2 \text{ cm s}^{-1}$; Druitt et al. 2002). Une vitesse d'ascension encore plus lente conduirait peut être à un système largement ouvert et à une densification beaucoup plus importante, donnant lieu à une éruption effusive de type dôme de lave. Il est à noter que cette interprétation demande à être étayée, notamment par une analyse du type de vésicularité (isolée, connectée, taille des vésicules, origine probable...) présente dans les bombes du Pichincha afin de les comparer aux vésicules observées dans les échantillons de la Soufrière Hills.

V.5. Conclusion

L'étude détaillée des textures d'une série de bombes en croûte de pain nous a permis de préciser leur histoire de vésiculation et de la replacer parmi celles des autres produits issus

des explosions volcaniennes de la Soufrière Hills en 1997. Les quatre groupes texturaux que nous avons différenciés constituent un spectre complet, des bombes de type G1 proches des échantillons denses aux bombes G4 dont les intérieurs sont texturalement très similaires aux ponces. Les bombes proviennent de la partie superficielle du conduit, juste sous les échantillons très denses, et au-dessus d'une zone de transition contenant des ponces rubanées et denses. L'acquisition de la vésicularité dans les bombes se fait aussi de manière intermédiaire entre les échantillons denses et les ponces.

Au début de chaque explosion, la rupture du bouchon dégazé provoque une nucléation hétérogène dans le magma. Dans les bombes de type G1 et G2 qui sont les plus superficielles, la nucléation, la fragmentation et l'éjection de la bombe hors du conduit ont lieu presque simultanément. Après éjection, le refroidissement de la surface de ces échantillons forme une bordure dans laquelle la nucléation et la croissance des vésicules sont rapidement stoppées, conduisant à une vésicularité faible (~1 à 8 %vol) constituée de vésicules isolées de ~10 µm. Dans l'intérieur protégé quelques secondes de la trempe, les bulles nucléent en plus grand nombre et leur expansion provoque localement la fracturation de phénocristaux d'amphiboles. Cette expansion de l'intérieur à la fois par croissance des vésicules (~60 %vol) et par fracturation des amphiboles (~40 %vol) provoque la craquelure de la bordure dense. Des fractures liées à la contraction thermique de la bordure se produisent parfois sur la surface de la bombe, augmentant le volume total de fractures. Dans les bombes de type G3 et G4 qui sont initialement plus profondes dans le conduit, il existe un délai de quelques secondes entre la nucléation provoquée par l'explosion du bouchon et la fragmentation puis l'éjection de la bombe. Ce délai permet la nucléation plus importante de bulles, ainsi que leur croissance jusqu'à au moins ~14 µm avant la fragmentation, conduisant à une vésicularité finale dans la croûte plus élevée (5 à 25 %vol) que dans les bordures des bombes G1 et G2 (1 à 8 %vol). Dans l'intérieur de la bombe, la nucléation et la croissance des vésicules sont encore plus avancées, conduisant même à la formation d'une population de vésicules de taille intermédiaire (~80-100 µm) par coalescence des petites vésicules. Cette population ainsi que l'apparition de fines fractures et les vestiges d'un réseau pré-explosif de vésicules, provoquent la formation de chenaux permettant le dégazage. L'intérieur de ces bombes dont la vésicularité peut atteindre jusqu'à 65 %vol possèdent une texture ressemblant fortement à celle des ponces.

VI. Analyses chimiques des éléments majeurs et volatils

VI.1. Objectifs des analyses chimiques

Les études texturales que nous avons menées en 2D et en 3D sur les échantillons des explosions vulcaniennes de 1997 de la Soufrière Hills ont été complétées par des analyses chimiques, notamment en volatils, afin de confirmer ou d'infirmer certaines conclusions concernant notamment le dégazage. Ce chapitre, qui rassemble ces données, est un travail inachevé, en raison d'un manque de temps disponible pour parfaire certaines analyses. Il sera complété dans les mois qui viennent par des analyses isotopiques de l'hydrogène réalisées par Ilya Binderman à l'Université d'Oregon. De nouvelles analyses des éléments volatils dans certains échantillons seront aussi peut être réalisées. Ce chapitre présente donc les données actuelles obtenues sur les échantillons dont la texture a été analysée précédemment (Chapitres 3 à 5), ainsi que les quelques conclusions provisoires qui ont pu être tirées de ce travail.

Ces analyses chimiques avaient plusieurs objectifs précis :

- Quantifier les proportions de cristaux dans la phase solide afin de les comparer à celles obtenues par analyses texturales en 2D et en 3D (Chapitres 3 et 4) mais aussi à celles déjà publiées (Murphy et al. 2000 ; Edmonds et al. 2001 ; Harford et al. 2003 ; Villemant et al. 2008 ; Burgisser et al. soumis a ; cf. Chapitre 2). Cet objectif a impliqué des analyses roche totale en ICP-AES sur quelques échantillons et des analyses en éléments majeurs du verre matriciel à la microsonde électronique. Cette quantification s'est faite par bilan de masse en utilisant la teneur en potassium (Harford et al. 2003).
- Evaluer la teneur en éléments chlore, fluor et soufre afin d'estimer d'éventuelles variations relatives entre les différents types texturaux et obtenir ainsi des informations relatives, voire absolues, sur le dégazage lors des explosions vulcaniennes. Ces teneurs en volatils (Cl notamment) sont aussi comparées avec les données existantes obtenues sur les verres matriciels mais aussi les inclusions magmatiques (Murphy et al. 2000 ; Edmonds et al. 2001 ; Harford et al. 2003 ; Villemant et al. 2008 ; cf. Chapitre 2).
- Estimer les teneurs en eau des verres résiduels afin de (1) évaluer une variation relative entre les types texturaux et (2), confirmer les fortes teneurs en eau des verres matriciels des ponce très vésiculées (jusqu'à ~2,8 %pds) obtenus par Burgisser et al. (soumis a) et qu'on ne retrouve pas dans les études de Harford et al. (2003) ou Villemant et al. (2008, même en tenant compte de la correction pour la teneur en microlites). Les teneurs en eau ont été quantifiées par analyse en spectrométrie Raman.

- Replacer toutes les valeurs obtenues dans le contexte du dynamisme de conduit proposé suite aux études texturales (Chapitres 3 et 4) mais aussi ceux proposés par d'autres auteurs à partir de données texturales liées aux cristaux ou à partir de mesures et calculs liés à la chimie (Clarke et al. 2007 ; Villemant et al. 2008).

Quel que soit la méthode d'analyse ponctuelle utilisée (microsonde électronique ou spectroscopie Raman), les analyses chimiques que nous avons réalisées n'ont pas été très satisfaisantes dans l'ensemble, en raison de la difficulté à trouver des plages de verre assez vastes, épaisses et homogènes, pour pouvoir effectuer des analyses nombreuses et précises (temps de comptage limité). Néanmoins, comme le montrent les paragraphes suivants, les diverses analyses effectuées s'insèrent de façon cohérente dans les données déjà existantes sur les produits des explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills (Barclay et al. 1998, Devine et al. 1998 ; Murphy et al. 2000 ; Edmonds et al. 2001 ; Harford et al. 2003 ; Villemant et al. 2008 ; Burgisser et al. soumis, a). De plus, elles permettent de confirmer certaines des hypothèses utilisées dans ce manuscrit et donnent des informations, au moins qualitatives, voire semi-quantitatives, concernant certains aspects du dégazage.

VI.2. Méthodes

VI.2.1 Estimation de la cristallinité à l'aide des analyses chimiques

VI.2.1.a *Principe de la méthode*

L'un des objectifs des analyses chimiques était d'estimer la proportion de cristaux (phénocristaux + microphénocristaux + microlites) dans la phase solide, le reste de celle-ci étant constitué de verre. L'analyse des éléments majeurs permet d'estimer la proportion massique de cristaux par rapport au verre, grâce notamment au potassium. Le potassium est un élément qui entre très peu dans la composition chimique des différents minéraux constituant la paragenèse des échantillons andésitiques de la Soufrière Hills, et qui va donc se concentrer dans le verre résiduel. En disposant à la fois de la teneur en potassium des divers constituants (phases cristallines et verre résiduel), ainsi que sa teneur dans la roche totale, il est possible pour chaque échantillon de retrouver la proportion massique de cristaux via un simple bilan de masse (Harford et al. 2003).

La paragenèse des produits des explosions vulcaniennes est composée de plagioclase (Plg), d'amphibole (Amp), d'orthopyroxène (Opx) et de titanomagnétite (Mgt), dont les fractions massiques et compositions chimiques sont fournies par Murphy et al. (2000) et figurent dans le Tableau 13. Nous avons effectué la moyenne et l'écart-type de chacune de ces

compositions. Ces données montrent que seuls le plagioclase et l'amphibole contiennent du potassium en quantité non négligeable et doivent être pris en compte dans le bilan de masse.

Tableau 13. Fraction massique (X en % pds de l'assemblage minéralogique constitué par les phénocristaux), compositions chimiques moyennes (et écart-types) en % pds, et masse volumique (kg m^{-3}) des minéraux constituant la paragenèse des produits volcaniques (données de Murphy et al. 2000). Nous avons considéré que ces valeurs étaient valables pour toutes les tailles de cristaux (microlites à phénocristaux).

Minéral	Plagioclase	Amphibole	Orthopyroxène	Titanomagnétite
X	70(5)	17(2)	7(2)	6(1)
SiO ₂	51,64 (3,72)	46,42 (2,80)	52,88 (0,87)	0,13 (0,09)
TiO ₂	0,00 (0,00)	1,61 (0,32)	0,19 (0,12)	8,44 (0,82)
Al ₂ O ₃	30,28 (2,68)	8,37 (3,21)	1,13 (0,62)	2,34 (0,53)
FeO	0,48 (0,19)	13,85 (0,65)	17,07 (5,80)	78,30 (2,01)
MnO	0,01 (0,03)	0,47 (0,15)	0,97 (0,43)	0,64 (0,07)
MgO	0,02 (0,02)	13,99 (0,35)	19,43 (4,10)	1,45 (0,12)
CaO	13,67 (3,15)	11,22 (0,22)	8,18 (9,53)	0,14 (0,17)
Na ₂ O	3,71 (1,71)	1,49 (0,46)	0,21 (0,03)	0,00 (0,00)
K ₂ O	0,12 (0,11)	0,19 (0,02)	0,00 (0,00)	0,00 (0,00)
ρ	2 600	2 980	3 200	5 200

Soient K_2O_{tot} , K_2O_{amph} , K_2O_{plag} et K_2O_{verre} (% pds) les teneurs en potassium dans la roche totale, dans l'amphibole, dans le plagioclase et dans le verre résiduel respectivement, C_{pds} (% pds) la proportion massique de cristaux dans la phase solide et X_{amph} et X_{plag} (%pds) les fractions massiques d'amphibole et de plagioclase de la paragenèse constituant les échantillons de la Soufrière Hills. La conservation de la masse de potassium conduit à l'équation suivante :

$$K_2O_{tot} = C_{pds} X_{amph} K_2O_{amph} + C_{pds} X_{plag} K_2O_{plag} + (1 - C_{pds}) K_2O_{verre} \quad [57]$$

D'où la proportion massique de cristaux dans la phase solide s'exprime par :

$$C_{pds} = \frac{K_2O_{tot} - K_2O_{verre}}{X_{amph} K_2O_{amph} + X_{plag} K_2O_{plag} - K_2O_{verre}} \quad [58]$$

La fraction volumique de cristaux (C_{vol}) est déterminée à l'aide de la fraction massique (C_{pds}) calculée par l'équation [58] d'une part et des masses volumiques moyenne de la paragenèse (ρ_{crist}) et du verre résiduel (ρ_{verre}) d'autre part, via l'équation :

$$C_{vol} = \frac{\frac{C_{pds}}{\rho_{crist}}}{\frac{C_{pds}}{\rho_{crist}} + \frac{(1 - C_{pds})}{\rho_{verre}}} = \frac{C_{pds} \rho_{verre}}{C_{pds} (\rho_{verre} - \rho_{crist}) + \rho_{crist}} \quad [59]$$

La densité moyenne pondérée de la paragenèse cristalline (ρ_{crist}) est de $\sim 2860 \text{ kg m}^{-3}$, calculée en utilisant les données du Tableau 13. Afin de résoudre l'équation [59], il faut déterminer les teneurs en potassium de la roche totale et du verre résiduel (K_2O_{tot} et K_2O_{verre} respectivement) ainsi que la composition chimique du verre résiduel, afin d'en calculer sa masse volumique (ρ_{verre}). Celle-ci sera calculée à l'aide du programme Conflow (Mastin 2002).

VI.2.1.b Analyse des éléments majeurs dans les roches totales

Les analyses roches totales ont été réalisées sur cinq échantillons de types texturaux très différents : un échantillon dense du bouchon dégazé (AMO35), une bombe en croûte de pain (BCP1), une scorie (AMO29) et une ponce (PV3) issues de coulées pyroclastique et une ponce de retombée (R1).

Les compositions chimiques des roches totales ont été obtenues grâce à des mesures par Spectrométrie d'Emission Atomique (ICP-AES = Inductively Coupled Plasma - Atomic Emission Spectrophotometry) effectuées au LMV par Mhammed Benbakkar. L'appareillage utilisé est un spectromètre d'émission atomique à source plasma à couplage inductif Jobin-Yvon type Ultima-C. Il combine deux systèmes dispersifs indépendants et permet d'analyser les éléments majeurs et certains éléments mineurs et traces. L'erreur associée à chaque teneur en oxyde est considérée comme étant la même d'un échantillon à l'autre et est égale à la déviation des mesures effectuées sur le même standard durant un an de mesures (Tableau 14).

VI.2.1.c Analyses des éléments majeurs dans les verres résiduels

Afin d'analyser les éléments majeurs dans le verre matriciel, chaque échantillon a d'abord été broyé grossièrement afin d'obtenir des fragments de quelques millimètres, puis les morceaux contenant le moins de vésicules et dépourvus de phénocristaux (estimation réalisée à la loupe binoculaire) ont été montés en plots dans de la résine Epofix imprégnée sous vide. Enfin, chaque plot a été poli jusqu'au $\frac{1}{4}$ de micron et métallisé, avant d'être analysé à la microsonde. Il est à noter que pour les bombes en croûte de pain, la bordure et l'intérieur de la bombe ont d'abord été séparés à l'aide d'une scie circulaire à diamant, permettant de réaliser deux plots par bombe, l'un contenant uniquement des fragments de la

croûte, et l'autre, uniquement des fragments de l'intérieur. Ce type de préparation permet d'optimiser la proportion de verre disponible pour l'analyse et convient à la fois aux mesures par microsonde et aux mesures par spectroscopie Raman effectuées ultérieurement.

Les éléments majeurs dans les verres résiduels ont été analysés par spectrométrie de dispersion de longueurs d'onde des rayons X (WDS : wavelength dispersive X-ray spectrometry) à l'aide de la microsonde électronique CAMECA SX-100 du LMV. La microsonde dispose de quatre spectromètres et huit cristaux monochromateurs permettant de diffracter séquentiellement les photons X émis par un échantillon bombardé par un faisceau d'électrons, puis de les envoyer sur un détecteur (compteur à flux gazeux). Pour ces analyses, la tension d'accélération était de 15 kV, l'intensité de 4 nA et le temps de comptage de 10 s sur chaque élément. Les analyses ont été effectuées de façon ponctuelle la plupart du temps, en raison de la faible surface de verre (visuellement) homogène disponible. Lorsque cela a été possible, le faisceau a été défocalisé jusqu'à 2 μm voire 5 μm dans le meilleur des cas.

Pour chaque échantillon, au moins cinq analyses de verre ont été réalisées, chacune étant entachée d'une erreur analytique liée à la microsonde. De plus, même si le verre est supposé homogène, il existe une variation des teneurs en éléments majeurs entre les cinq points effectués dans le même échantillon. L'erreur moyenne (2σ) liée à la machine est donnée dans le Tableau 15 uniquement pour la composition moyenne du verre résiduel dans tous les échantillons (colonne grisée). Les deux erreurs (erreur analytique et variabilité) étant souvent du même ordre, nous avons considéré l'écart-type entre les différents points de mesure effectués sur un même échantillon comme étant l'erreur entachant la moyenne de ces points qui est donnée pour chaque échantillon dans le Tableau 15. Les mesures étant ponctuelles, il est probable que les valeurs obtenues souffrent d'une perte artificielle en sodium (Nielsen et Sidgursson, 1981), qui n'est de toute façon pas utilisé dans nos calculs de cristallinité.

VI.2.2 Analyse des éléments volatils dans les verres matriciels

VI.2.2.a Analyse de H_2O dans les verres résiduels

Les analyses de teneurs en eau dans le verre matriciel ont été effectuées par spectroscopie Raman, sur les mêmes plots que ceux utilisés pour les analyses à la microsonde électronique. La spectrométrie Raman est une méthode d'analyse physico-chimique ponctuelle non destructive, permettant de caractériser l'état de cristallinité et la composition moléculaire d'un matériau. Cette méthode repose sur l'étude des transitions vibrationnelles à

partir du phénomène de diffusion inélastique de la lumière. La mesure du rayonnement diffusé conduit à un spectre constitué d'un ensemble de raies. Le spectre obtenu représente l'intensité de la diffusion Raman en fonction de la différence de fréquence entre les raies excitatrices et les raies de diffusion, exprimée en nombre d'onde (cm^{-1}). Les valeurs de fréquence dépendent des atomes mis en jeu, des distances interatomiques et des structures cristallines. Le spectre Raman est donc une empreinte vibrationnelle du composé étudié qui permet son identification par comparaison avec une banque de spectres de référence. Un spectromètre Raman comprend une source lumineuse monochromatique, un système de collection de la lumière diffusée et d'un système de dispersion et de détection de la lumière recueillie. En raison de la faible intensité du phénomène à détecter, les sources lumineuses doivent être intenses, d'où l'utilisation de lasers.

De récentes études ont montré que la spectrométrie Raman pouvait être utilisée de façon quantitative afin de mesurer notamment la teneur en eau dans les verres volcaniques (Di Muro et al. 2006a et b ; Thomas 2008a et b ; Mercier et al. 2009). Cette méthode d'analyse a l'avantage d'être non destructive, de requérir une préparation rapide des échantillons (simple polissage au $\frac{1}{4}$ de micron), et permet d'effectuer des analyses ponctuelles de l'ordre du micron. En revanche, les spectres obtenus peuvent être biaisés par la présence de fluorescence due à la résine. La focalisation du faisceau sur la surface de l'échantillon est aussi importante, car la profondeur d'excitation du faisceau laser a une influence directe sur la valeur de la teneur en eau obtenue, notamment pour des verres rhyolitiques (Mercier et al. 2009).

Sur le spectre Raman d'un verre rhyolitique hydraté typique (Figure 110), deux parties nous intéressent particulièrement : une partie entre ~ 200 et $\sim 1200 \text{ cm}^{-1}$ liée à la structure de l'échantillon et une partie vers les plus hautes fréquences, entre ~ 2800 et $\sim 4000 \text{ cm}^{-1}$, dans laquelle figure la bande liée à la présence d'eau aux environs de 3550 cm^{-1} . La première partie du spectre est divisible en deux parties, une partie basse fréquence (~ 200 à $\sim 600 \text{ cm}^{-1}$) dont la position dépend de l'état de dépolymérisation du réseau silicaté, et une partie haute fréquence (~ 800 à 1200 cm^{-1}), d'intensité faible dans les verres rhyolitiques et qui est sensible aux changements de proportions relatives et de spéciations des cations formant le réseau tels que Si, Al et Fe. Cette partie du spectre est importante car elle permet de vérifier si le volume analysé n'est bien constitué que de verre rhyolitique, ce qui dans le cas contraire, fausserait la valeur de concentration en eau obtenue.

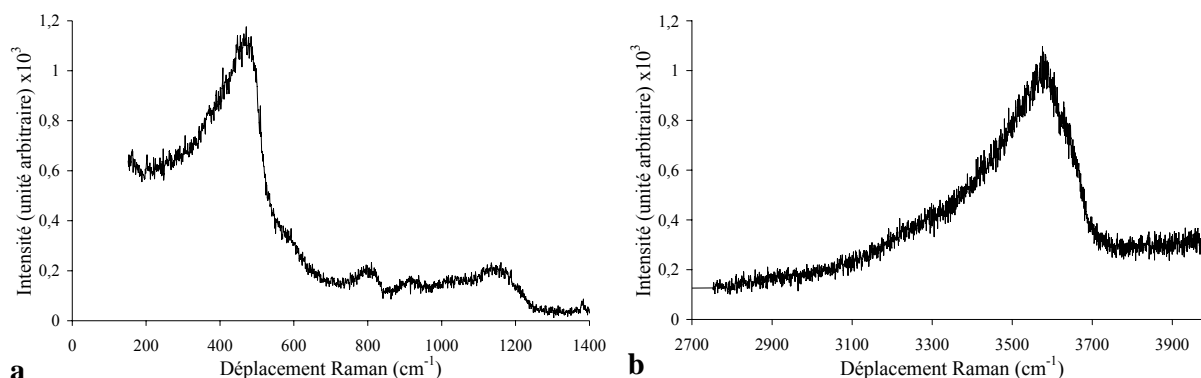


Figure 110. Exemples de spectres Raman d'un des standards utilisés (HGG4, haplogranite avec 3,63 %pds d'eau). a) spectre aux basses fréquences permettant de connaître qualitativement la composition du volume analysé. b) spectre aux plus hautes fréquences utilisé dans la quantification de la teneur en H₂O.

L'intensité de la bande de l'H₂O, obtenue après définition et soustraction d'une ligne de base à l'aide du logiciel PeakFit, est directement proportionnelle à la fraction massique d'eau dans l'échantillon (Di Muro et al. 2006a et b). En utilisant plusieurs standards dont la teneur en eau est bien contrainte de façon indépendante, il est possible d'établir une relation linéaire simple entre l'intensité mesurée et la teneur en eau, et ainsi de déterminer la teneur en eau de n'importe quel échantillon.

Nous avons effectué nos analyses sur deux spectromètres Raman différents : le spectromètre Renishaw du Laboratoire Pierre Süe au Commissariat à l'Energie Atomique à Saclay et un spectromètre Raman LabRam fabriqué par Horiba Jobin Yvon au Laboratoire de Spectrochimie Infrarouge et Raman du CNRS, à Thiais. Les analyses se sont faites à l'aide de lasers verts de longueur d'onde 532 et 514 nm respectivement. Nous avons effectué les acquisitions avec l'aide d'Andrea Di Muro et Maxime Mercier. Andrea Di Muro a ensuite traité seul les spectres et nous a fourni les concentrations en eau de nos échantillons.

Les analyses de nos échantillons se sont faites à chaque fois en deux parties, une acquisition rapide (1×10 s) dans les courts nombres d'onde (150 à 1400 cm⁻¹) afin d'évaluer si le volume analysé n'est bien constitué que de verre ; puis, si c'est le cas, une analyse plus longue (1×30 s) dans ces mêmes longueurs d'onde et une autre acquisition de 1×60 s entre 2750 et 4000 cm⁻¹ afin de capturer le pic lié à l'eau. Cinq standards ont été utilisés pour calibrer la relation entre l'intensité mesurée et la teneur en eau, 3 mesures étant effectuées sur chaque standard et à chaque séance. Ces standards avaient une composition chimique proche de nos verres rhyolitiques et contenaient de 0,52 à 7 %pds d'eau.

VI.2.2.b Analyse de Cl, F et S dans les verres résiduels

Le chlore, le fluor et le soufre ont été analysés à la microsonde électronique du LMV, sur la plupart des échantillons. Les analyses ont été effectuées de façon ponctuelle à l'aide d'un faisceau d'une tension de 15 kV et d'une intensité de 80 nA. Le temps de comptage par analyse était de 5 secondes sur le chlore et le soufre et de 30 secondes sur le fluor (3 spectromètres dédiés au fluor seul). Chaque point analysé a subi 5 acquisitions consécutives permettant un temps de comptage total de 150 s (5×30) sur le fluor et de 25 s (5×5) sur le chlore et le soufre. Cette façon de procéder nous a permis d'éviter les pertes en volatils au cours de l'analyse, en vérifiant pour chaque point qu'il n'y avait pas de diminution systématique et régulière des teneurs en Cl, F et S durant la succession d'analyses. Comme pour l'analyse des éléments majeurs, au moins cinq points ont été effectués sur un même échantillon et les valeurs et erreurs fournies dans les résultats sont respectivement les moyennes et écart-types de ces cinq mesures. Les limites de détection sont de 70 ppm pour le Cl, 60 ppm pour le S et 280 ppm pour le F. Les mesures effectuées avec des temps de comptage plus longs qui auraient permis d'abaisser la limite de détection présentaient une perte en volatils trop importante.

VI.3. Résultats

VI.3.1 Teneurs en éléments majeurs dans les roches totales

Les résultats des analyses chimiques sur les roches totales figurent dans le Tableau 14. La composition est andésitique, avec une teneur en SiO_2 d'environ 58,5 %pds. La composition chimique moyenne varie très peu d'un échantillon à l'autre et ces valeurs sont très proches de celles obtenues par Devine et al. (1998), Barclay et al. (1998), Murphy et al. (1998), Zellmer et al. (2003) et Villemant et al. (2008) sur d'autres échantillons provenant des diverses phases éruptives de la Soufrière Hills depuis le début de l'éruption en 1995. Cela illustre bien la faible variabilité de composition en roche totale de l'andésite de la Soufrière Hills. Pour effectuer les calculs de cristallinité, nous avons utilisé la teneur moyenne en potassium et l'erreur associée ($0,69 \pm 0,21$ %pds).

Tableau 14. Analyses roches totales effectuées par ICP-AES. Les valeurs sont en %pds.

Echantillon	AMO35	BCP1	AMO29	PV3	R1	Echantillon moyen	Erreur analytique
Type	Dense	Bombe en croûte de pain	Scorie de coulée pyroclastique	Ponce de coulée pyroclastique	Ponce de retombée	Moyenne des échantillons	
SiO ₂ %	58,33	58,41	58,02	58,47	58,25	58,55	0,85
Al ₂ O ₃ %	17,03	17,83	17,73	17,98	18,34	17,86	2,58
Fe ₂ O ₃ %	7,94	7,43	7,30	7,19	7,10	7,42	0,19
MgO%	3,35	2,91	3,03	2,66	2,73	2,95	0,97
CaO%	7,81	7,54	7,63	7,58	7,93	7,73	0,87
Na ₂ O%	3,17	3,54	3,41	3,63	3,53	3,47	1,70
K ₂ O%	0,67	0,78	0,77	0,79	0,40	0,69	0,21
TiO ₂ %	0,68	0,63	0,62	0,62	0,62	0,64	1,76
MnO%	0,20	0,19	0,18	0,17	0,17	0,18	0,96
P ₂ O ₅ %	0,16	0,16	0,14	0,15	0,15	0,15	1,49
Ba%	0,0252	0,0250	0,0265	0,0268	0,0263	0,03	6,05
Sr%	0,0262	0,0271	0,0269	0,0274	0,0289	0,03	2,24
H ₂ O+%	0,03	0,05	1,00	0,08	0,06	0,25	1,00
H ₂ O-%	-0,20	0,07	-0,02	0,43	-	0,06	1,00
Total%	99,23	99,58	99,87	99,81	99,34	100,00	

VI.3.2 Teneurs en éléments majeurs dans les verres matriciels

Les compositions des verres matriciels de tous les échantillons analysés figurent dans le Tableau 15. Le verre est de nature rhyolitique avec une teneur en SiO₂ moyenne de 78,00±0,82 %pds (variant de 75,22 à 78,98 %pds) et une teneur en potassium (K_2O_{verre}) de 2,65±0,20 %pds. La composition moyenne de ces verres nous a permis de calculer la densité moyenne du verre résiduel, nécessaire au calcul de la fraction volumique de cristaux (Eq. [59]). La densité a été calculée à l'aide du program Conflow (Mastin, 2002) pour une température ambiante (20°C), une teneur en H₂O nulle et en absence de cristaux. La masse volumique utilisée (ρ_{verre}) issue de ce programme est de ~2 390 kg m⁻³.

VI.3.3 Fractions cristallines dans les échantillons

Les fractions massique et volumique de cristaux ont été calculées en utilisant la méthode décrite précédemment et figurent dans le Tableau 15 pour chaque échantillon. Globalement, le taux de cristallisation est assez fort, variant de 43 à 88 %pds avec une moyenne de 74 %pds, et montre une très légère corrélation avec la vésicularité mesurée par pycnométrie à hélium, les échantillons les plus vésiculés ayant une cristallinité légèrement plus faible. Ces valeurs correspondent à des proportions volumiques de 40 à 86 %vol. Il est à noter que les échantillons les plus denses (AMO27-35-40-43) montrent des fractions cristallines très variables, de 42-43 jusqu'à 80-88 %pds.

Les valeurs que nous avons obtenues sont cohérentes avec celles obtenues par analyses d'images en 2D (Tableau 15, Figure 111), si ce n'est pour la bordure de la bombe BCP1 pour laquelle la valeur obtenue par analyse d'images en 2D est plus faible que celle obtenue par la méthode du bilan de masse. Ceci peut s'expliquer par une sous-estimation de la teneur en microlites lors de l'analyse d'images en 2D, certains microlites étant peut-être trop petits pour être analysés, même au grossissement $\times 1500$. Cette cohérence confirme l'efficacité de la méthode utilisée pour les analyses d'images en 2D. Ces teneurs sont aussi compatibles avec les 66 à 90 %pds obtenus par Harford et al. (2003) en utilisant la même méthode liée à la teneur en potassium. De même, nos valeurs sont en accord avec les fractions cristallines variant de 47 à 82 %vol obtenues par Burgisser et al. (soumis, a) par analyses d'images en 2D (en comptant les phénocristaux et les microlites, soit 42 à 80 %pds).

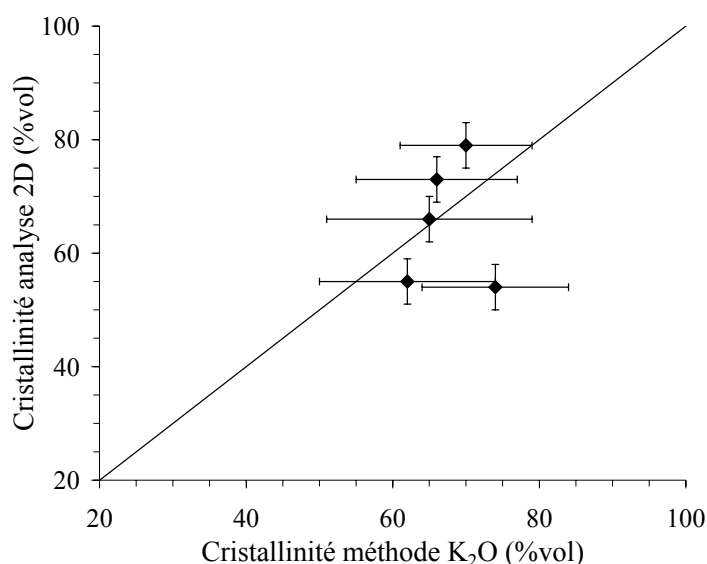


Figure 111. Comparaison entre les cristallinités obtenue par analyses d'images (Chapitre 3) et par la méthode des bilans de masse sur les teneurs en potassium.

Tableau 15. Données issues des analyses chimiques des éléments majeurs et volatils à la microsonde, des analyses en eau du verre résiduel par spectroscopie Raman et par la méthode de titration à la Karl Fisher (Burgisser et al. soumis, a). Les teneurs en oxydes et en H₂O sont en %pds et les valeurs de Cl, F et S sont en ppm. La cristallinité calculée à partir des teneurs en potassium est donnée en %pds et en %vol. Figurent aussi les vésicularités (ϕ en %vol) mesurées par pycnométrie à hélium (¹) ou par analyse d'images (²) par Burgisser et al. (soumis, a). Il est possible que ces valeurs souffrent d'une perte en sodium. L'erreur (2 σ) liée à la machine est donnée pour le verre moyen uniquement. Les valeurs entre parenthèses sont les variations sur les cinq points de mesures effectués pour chaque échantillon.

	Limite de détection	Verre Moyen	BCP1 cœur	BCP1 croûte	BCP2 cœur	BCP2 croûte	BCP4 cœur	BCP4 croûte	BCP31 cœur	BCP31 croûte	BCP33 croûte	BCP37 croûte
SiO ₂	-	78,00 (0,82)	78,24 (1,33)	77,92 (0,96)	77,18 (0,34)	78,58 (0,56)	78,43 (0,89)	78,79 (0,83)	78,21 (0,75)	76,23 (0,56)	78,72 (0,48)	78,48 (0,56)
Al ₂ O ₃	-	11,1 (0,26)	11,40 (0,80)	11,00 (0,19)	10,80 (0,50)	11,04 (0,50)	10,79 (0,87)	10,77 (0,75)	10,66 (0,46)	12,22 (1,34)	11,16 (0,77)	10,95 (0,70)
FeO	-	1,97 (0,23)	2,08 (0,22)	2,00 (0,19)	2,03 (0,11)	2,14 (0,21)	2,30 (0,11)	2,41 (0,25)	2,07 (0,24)	2,38 (0,53)	1,64 (0,21)	2,02 (0,17)
MgO	-	0,23 (0,05)	0,22 (0,20)	0,10 (0,02)	0,15 (0,08)	0,11 (0,05)	0,19 (0,07)	0,23 (0,09)	0,15 (0,02)	0,51 (0,29)	0,12 (0,02)	0,12 (0,03)
CaO	-	1,33 (0,15)	1,28 (0,32)	0,80 (0,12)	1,30 (0,24)	1,17 (0,30)	1,38 (0,40)	1,26 (0,36)	1,28 (0,27)	1,83 (0,63)	1,10 (0,23)	1,23 (0,42)
Na ₂ O	-	2,80 (0,17)	2,99 (0,43)	2,74 (0,21)	2,46 (0,16)	2,80 (0,28)	2,54 (0,23)	3,05 (0,38)	2,73 (0,25)	3,10 (0,32)	2,53 (0,28)	2,44 (0,22)
K ₂ O	-	2,65 (0,2)	2,86 (0,07)	3,31 (0,28)	2,40 (0,12)	2,61 (0,13)	2,56 (0,21)	2,67 (0,18)	2,46 (0,16)	2,23 (0,32)	2,58 (0,24)	2,34 (0,17)
TiO ₂	-	0,44 (0,13)	0,45 (0,10)	0,53 (0,08)	0,54 (0,03)	0,43 (0,07)	0,44 (0,07)	0,53 (0,09)	0,48 (0,04)	0,46 (0,07)	0,35 (0,10)	0,43 (0,04)
MnO	-	0,07 (0,10)	0,03 (0,04)	0,07 (0,07)	0,06 (0,06)	0,08 (0,05)	0,05 (0,04)	0,07 (0,03)	0,05 (0,04)	0,06 (0,04)	0,10 (0,08)	0,05 (0,04)
P ₂ O ₅	-	0,10 (0,17)	0,13 (0,09)	0,07 (0,04)	0,10 (0,08)	0,09 (0,05)	0,18 (0,17)	0,16 (0,13)	0,14 (0,14)	0,10 (0,08)	0,07 (0,05)	0,04 (0,07)
Total	-	98,78	99,69	98,55	97,02	99,07	99,85	100,3	97,57	99,11	98,38	98,1
Cl	70	2690 (360)	2703 (88)	2650 (334)	2623 (289)	2476 (173)	2656 (166)	2828 (334)	2860 (260)	2674 (191)	2548 (128)	-
F	280	336 (97)	504 (93)	384 (144)	419 (120)	449 (61)	241 (120)	354 (73)	418 (66)	397 (104)	337 (76)	-
S	60	20 (8)	34 (21)	21 (15)	16 (7)	24 (14)	13 (8)	14 (5)	20 (7)	34 (31)	9 (5)	-
H ₂ O Raman	-	-	0,60 (0,13)	-	1,68 (0,08)	-	0,43 (0,05)	0,38 (0,18)	1,56 (0,04)	-	0,67 (0,01)	0,73 (0,11)
H ₂ O KFT	-	-	1,10 (0,34)	0,83 (0,13)	1,16 (0,15)	0,99 (0,19)	1,63 (0,41)	0,81 (0,18)	-	-	-	-
C _{pds}	-	74 (10)	74 (8)	77 (9)	72 (11)	74 (10)	73 (11)	74 (10)	73 (11)	68 (15)	74 (11)	71 (12)
C _{vol}	-	71 (11)	70 (9)	74 (10)	69 (12)	71 (11)	69 (12)	71 (11)	69 (12)	65 (16)	70 (12)	68 (13)
C (2D)	-	-	79 (4)	54 (4)	-	-	-	-	-	-	-	-
ϕ	-	-	32,9 ¹	7,5 ¹	31 ²	<5 ²	54 ²	<5 ²	38,1 ¹	1,5 ¹	5,1 ¹	9,4 ¹

	AMO27	AMO35	AMO40	AMO43	AMO29	AMO36	PV3	AMO3D	AMO9	MTO-6-2-a	MTO-6-3-a
SiO ₂	78,95 (0,85)	77,76 (1,73)	75,22 (1,12)	78,94 (0,60)	78,98 (0,99)	77,49 (0,88)	78,05 (0,44)	78,30 (2,73)	76,97 (0,47)	78,95 (0,58)	77,54 (0,99)
Al ₂ O ₃	10,71 (0,38)	11,18 (1,04)	12,43 (1,40)	10,74 (0,79)	10,83 (0,30)	11,35 (0,33)	10,95 (0,49)	10,61 (1,39)	11,34 (0,68)	11,51 (0,22)	11,43 (0,58)
FeO	2,04 (0,11)	1,76 (0,34)	1,36 (0,02)	1,53 (0,72)	2,02 (0,14)	1,74 (0,75)	1,89 (0,13)	1,73 (0,08)	2,53 (0,20)	1,73 (0,08)	2,02 (0,06)
MgO	0,12 (0,04)	0,22 (0,11)	0,34 (0,32)	0,14 (0,10)	0,18 (0,06)	0,65 (0,75)	0,36 (0,27)	0,13 (0,03)	0,40 (0,23)	0,19 (0,04)	0,23 (0,06)
CaO	0,82 (0,08)	1,73 (0,58)	1,24 (0,48)	1,41 (0,51)	1,45 (0,12)	1,56 (0,13)	1,53 (0,22)	1,16 (0,36)	1,71 (0,24)	1,30 (0,18)	1,32 (0,21)
Na ₂ O	2,52 (0,56)	4,08 (0,39)	2,64 (0,19)	2,96 (0,52)	2,63 (0,19)	3,01 (0,24)	3,49 (0,13)	2,46 (0,78)	2,35 (0,27)	2,54 (0,08)	2,64 (0,46)
K ₂ O	3,32 (0,15)	1,63 (0,84)	5,31 (0,14)	2,70 (1,85)	2,26 (0,10)	2,15 (0,18)	2,28 (0,10)	2,68 (0,26)	2,05 (0,10)	2,50 (0,08)	2,75 (0,02)
TiO ₂	0,40 (0,06)	0,45 (0,08)	0,40 (0,05)	0,47 (0,10)	0,44 (0,04)	0,50 (0,09)	0,33 (0,10)	0,30 (0,02)	0,51 (0,14)	0,35 (0,04)	0,41 (0,11)
MnO	0,08 (0,05)	0,05 (0,04)	0,01 (0,01)	0,10 (0,09)	0,08 (0,05)	0,07 (0,07)	0,07 (0,04)	0,06 (0,05)	0,05 (0,05)	0,12 (0,01)	0,07 (0,04)
P ₂ O ₅	0,02 (0,04)	0,12 (0,13)	0,17 (0,08)	0,11 (0,08)	0,11 (0,03)	0,11 (0,02)	0,00 (0,00)	0,00 (0,00)	0,16 (0,06)	0,09 (0,08)	0,03 (0,02)
Total	98,99	98,98	99,13	98,65	98,97	98,63	98,96	97,43	98,08	99,26	99,79
Cl	2647 (282)	2745 (242)	-	-	2936 (245)	1332 (382)	2619 (188)	-	2784 (228)	-	3177 (392)
F	391 (84)	170 (80)	-	-	233 (63)	215 (75)	236 (191)	-	376 (67)	-	301 (126)
S	17 (5)	21 (15)	-	-	18 (14)	33 (23)	8 (8)	-	33 (29)	-	13 (13)
H ₂ O Raman	0,41 (0,14)	-	0,33 (0,05)	-	-	-	1,03 (0,20)	-	2,64 (0,02)	-	-
H ₂ O KFT	0,37 (0,13)	0,20 (0,07)	0,26 (0,06)	0,54 (0,19)	0,45 (0,31)	0,77 (0,21)	1,32 (0,14)	-	2,79 (0,33)	-	2,38 (0,12)
C _{pds}	80 (8)	43 (26)	88 (5)	42 (48)	70 (10)	68 (13)	66 (11)	74 (11)	67 (13)	73 (10)	76 (8)
C _{vol}	77 (8)	40 (25)	86 (5)	42 (47)	66 (11)	65 (14)	62 (12)	71 (12)	64 (13)	70 (11)	73 (9)
C (2D)					73 (4)	66 (4)	55 (4)				
φ	<5 ²	<5 ²	23,6 ¹	30,6 ¹	58,2 ¹	60,7 ¹	75,7 ¹	65 ²	68 ²	70,0 ¹	58,1 ¹

VI.3.4 Teneurs en H₂O dans les verres matriciels

Les plages de verre analysables étaient la plupart du temps présentes à proximité de phénocristaux ou micro-phénocristaux, et il a parfois été difficile d'obtenir un spectre uniquement pour le verre, sans exciter le cristal voisin et ainsi biaiser involontairement le spectre obtenu. De plus, malgré leur aspect totalement homogène au microscope optique à fort grossissement, les plages de verre présentaient souvent un spectre de verre rhyolitique auquel se superposait un signal lié à la présence de magnétite (Figure 112), avec des raies caractéristiques à 193, 306, 538 et 668 cm⁻¹ (Shebanova et Lazor 2003) ou de plagioclase avec des raies à 170, 280, 480 et 510 cm⁻¹ (Kayama et al. 2009). L'amplitude des raies parasites observées n'est pas directement reliée au volume d'oxyde ou de plagioclase présent dans le volume analysé et donc il est très fastidieux de corriger pour leur présence.

La majeure partie du temps consacré à ces analyses a donc consisté à chercher des plages de verre assez vastes et ne montrant pas de signal lié à la présence d'oxyde ou de plagioclases pour pouvoir être analysées, ceci expliquant le faible nombre d'échantillons pour lesquels nous disposons de l'analyse en H₂O.

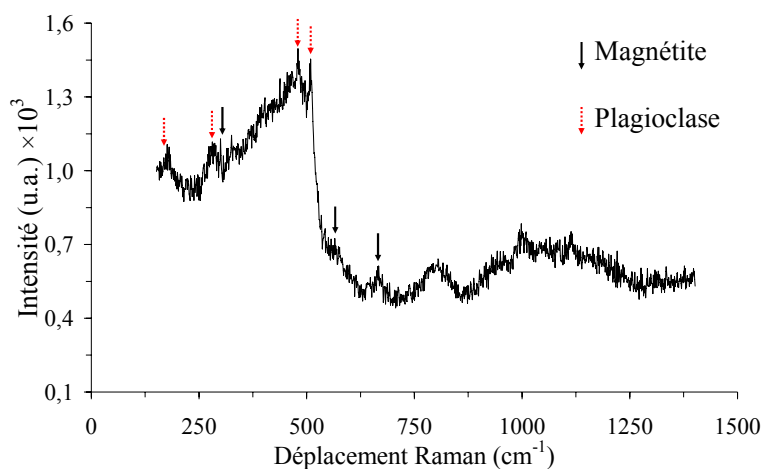


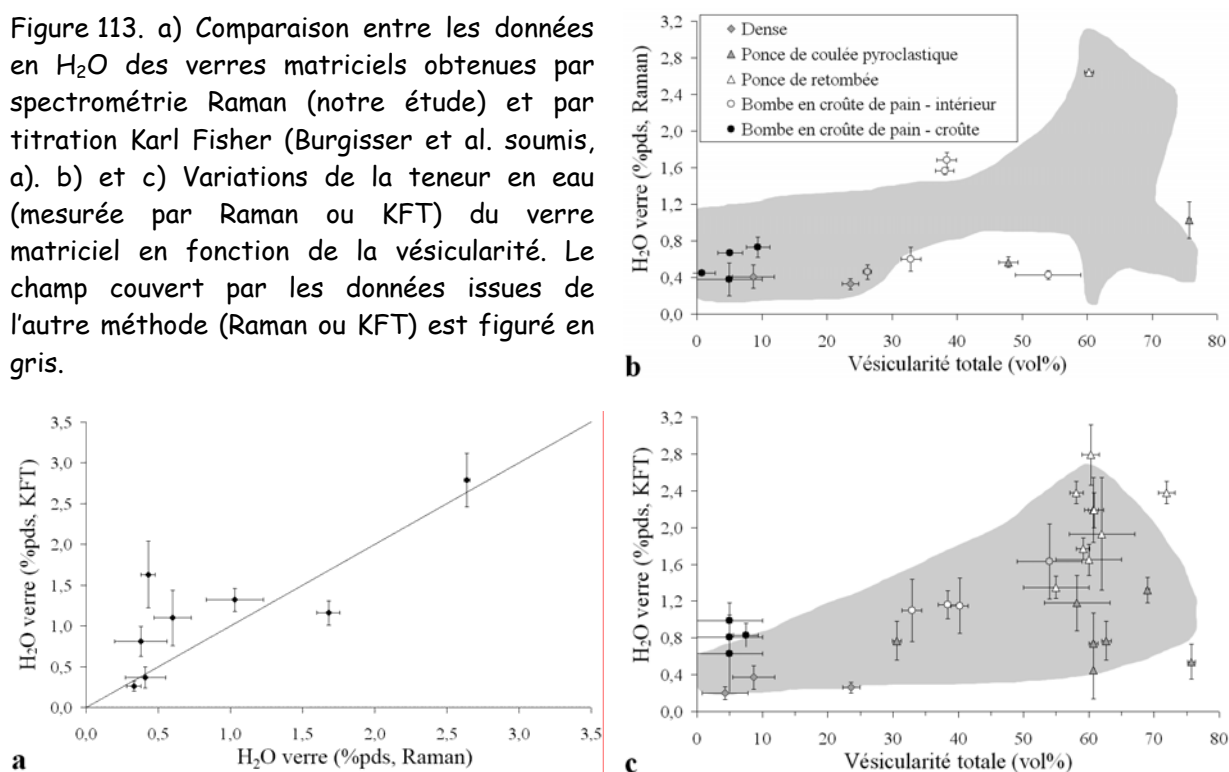
Figure 112. Exemple d'un spectre Raman obtenu sur un des verres analysés, paraissant optiquement homogène (échantillon BCP2-cœur). Le spectre obtenu montre la présence, même faible, de magnétite (flèches noires mettant en évidence les raies à 306, 538 et 668 cm⁻¹) et de plagioclase (flèches rouges à 170, 280, 480 et 510 cm⁻¹). L'intensité est en unité arbitraire.

Néanmoins, lorsque cela a pu être possible, nous avons effectué de 2 à 6 analyses sur chaque échantillon afin de s'assurer au mieux de l'homogénéité de la teneur en eau dans le verre matriciel de l'échantillon. Les teneurs données dans le Tableau 15 tiennent compte de l'erreur analytique mais aussi de la variation éventuelle mesurée dans l'échantillon.

Les teneurs en eau dans les verres matriciels varient de 0,38 à 2,64 %pds et sont globalement cohérentes avec les valeurs obtenues par titration Karl Fisher (Figure 113a) par Burgisser et al. (soumis) pour les échantillons dont nous disposons des mesures par les deux méthodes. Les deux méthodes montrent surtout la même variation de la teneur en eau avec la

vésicularité et la texture de l'échantillon (Figure 113b-c) : la teneur en eau des échantillons denses ($\phi < 25$ %vol) provenant du bouchon dégazé est inférieure à $\sim 0,4$ %pds, celle des croûtes des bombes en croûte de pain ($\phi < 10$ %vol) est inférieure à ~ 1 %pds alors que la teneur en eau atteint jusqu'à $2,2$ %pds dans les ponces de coulées pyroclastiques ($\phi = 25$ à 76 %vol) et jusqu'à $2,8$ %pds dans les ponces de retombées ($\phi > 55$ %vol). Les analyses par microspectrométrie Raman confirment le fait que certaines des ponces les plus vésiculées peuvent retenir de grandes quantités d'eau dans les verres matriciels.

Figure 113. a) Comparaison entre les données en H_2O des verres matriciels obtenues par spectrométrie Raman (notre étude) et par titration Karl Fisher (Burgisser et al. soumis, a). b) et c) Variations de la teneur en eau (mesurée par Raman ou KFT) du verre matriciel en fonction de la vésicularité. Le champ couvert par les données issues de l'autre méthode (Raman ou KFT) est figuré en gris.



Toutes les données en eau des verres résiduels, qu'ils soient obtenus par titration Karl Fisher ou par microspectrométrie Raman, sont inférieures aux teneurs en eau des inclusions contenues dans les plagioclases ($4,27 \pm 0,54$ %pds, Barclay et al. 1998). Elles sont en revanche supérieures aux teneurs obtenues par Harford et al. (2003), tous échantillons confondus (< 1 %pds), et celles obtenues par Villemant et al. (2008), même en tenant compte pour ces dernières du fait qu'il s'agisse de mesures correspondant à la matrice et non au verre seul ($< \sim 1,7$ %pds).

VI.3.5 Teneurs en Cl, F, S dans les verres résiduels

La teneur en chlore est assez élevée dans tous les échantillons, de l'ordre de 2690 ± 360 ppm, variant de 2540 à 3180 ppm. Seul l'échantillon AMO36 présente des valeurs en Cl nettement plus faibles, avec une teneur moyenne de 1330 ± 380 ppm (Figure 114a). La

teneur en fluor est en moyenne de 336 ± 97 ppm et semble diminuer légèrement avec la vésicularité (Figure 114b). Cependant la teneur en fluor étant assez proche de la limite de détection (280 ppm), l'interprétation des faibles variations observées est risquée. La teneur en soufre est inférieure à la limite de détection dans tous les échantillons (20 ± 8 ppm en moyenne contre 60 ppm pour la limite de détection).

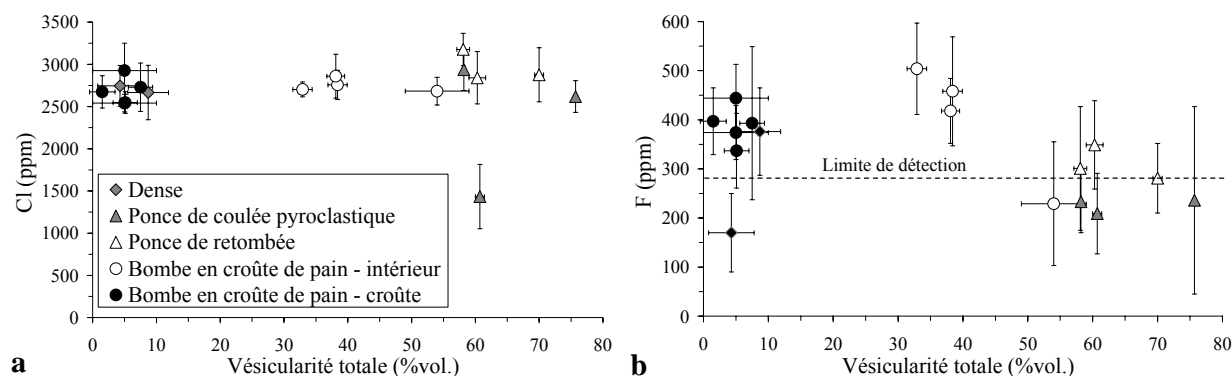


Figure 114. Variations des teneurs en Cl et F en fonction de la vésicularité totale de l'échantillon.

Les teneurs en chlore mesurées dans le verre matriciel sont du même ordre de grandeur que celles présentes dans la littérature et présentées dans le Chapitre 2 : 2515 ± 1824 ppm (Edmonds et al. 2001), 2700-3100 ppm Harford et al. (2003) et 3120 ± 1250 ppm (Villemant et al. 2008 en prenant en compte la correction pour les microlites). Selon Villemant et al. (2008), il existe une corrélation entre la vésicularité et la teneur en Cl de la matrice; les échantillons de ponces issues des explosions de septembre 1996 et août à octobre 1997, étant enrichis en chlore par rapport aux échantillons issus d'éruption de dôme (novembre 1995 à février 1996). Nous n'observons pas cette corrélation au sein des produits des explosions vulcaniennes uniquement, les échantillons les plus denses du bouchon dégazé ($\phi < 25$ %vol) et les ponces les plus vésiculées ($\phi > 75$ %vol) ayant la même teneur en Cl.

Les concentrations en Cl toutes sont inférieures aux teneurs mesurées dans les inclusions vitreuses contenues dans les plagioclases des échantillons provenant de la Soufrière Hills depuis 1995 (3372 ± 430 ppm, Devine et al. 1998 ; 3265 ± 1058 , Edmonds et al. 2001 ; jusqu'à 4500 ppm, Humphreys et al. 2009).

VI.4. Discussion

VI.4.1 Cristallisation des microlites

Nous avons vu précédemment dans les analyses texturales en 2D et en 3D (Chapitres 3 et 4) que le nombre de microlites était important, de l'ordre de $1,5-4,1 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$, environ la moitié étant des microlites de magnétite. La microspectrométrie Raman semble montrer qu'il existe aussi une proportion importante de cristaux dont la taille est inférieure au micron, des raies attestant de la présence de plagioclase et de magnétite étant souvent observées dans les verres, alors que l'observation par microscopie optique du verre montre l'absence de microlites visibles ($> 1 \mu\text{m}$). La présence de ces cristaux $< 1 \mu\text{m}$ montre que la densité numérique de microcristaux est peut être encore plus élevée que les valeurs calculées précédemment. Si on considère que, comme pour les microlites plus grands, $\sim 50\%$ sont des magnétites, la nucléation hétérogène a donc pu se produire largement dans le conduit au cours des explosions, la densité numérique de vésicules n'étant que de $\sim 6 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ au maximum. Cependant, il est possible aussi que ces magnétites aient été formées pendant l'explosion. Dans ce cas, il est probable qu'ils n'aient pas participé à la nucléation des vésicules syn-explosives.

VI.4.2 Temps disponible pour le dégazage

Dans les chapitres précédents, deux étapes de décompression ont été mises en évidence :

La première décompression est une décompression lente durant la remontée du magma depuis la chambre magmatique jusqu'à la surface, le taux de décompression moyen étant de l'ordre de $4,8 \times 10^{-4} \text{ MPa s}^{-1}$ (chambre magmatique à 125-130 MPa pour une remontée en $\sim 76\text{h}$; cf. Chapitre 2). Durant cette remontée, le dégazage se fait majoritairement en système clos. Burgisser et al. (soumis, a) ont cependant montré que durant les $\sim 9,5\text{h}$ entre deux explosions, la partie supérieure du conduit (jusqu'à $\sim 3 \text{ km}$) se comportait en système ouvert. Ce dégazage en système partiellement ouvert explique le fait que la teneur en eau des verres matriciels des échantillons du bouchon en surface soit beaucoup plus faible que la teneur en eau des ponces, plus profond dans le conduit. C'est aussi durant cette remontée depuis la chambre magmatique que croissent les microlites observés dans les matrices de tous les échantillons (Clarke et al. 2007). La position stratigraphique relative de l'échantillon contrôle sa teneur en microlites, les échantillons les plus superficiels étant les plus riches en microlites alors que les plus profonds en contiennent moins (Clarke et al. 2007 ; Burgisser et al. soumis, a ; cf. Chapitre 2)

La deuxième décompression est une décompression très rapide lors de chacune des explosions vulcaniennes, la phase de vidange d'une partie du conduit ne durant que quelques dizaines de secondes. Nous avons montré précédemment que le taux de décompression était alors de l'ordre de quelques MPa s⁻¹ (cf. Chapitres 3 et 4). Nous avons également démontré que la vésiculation syn-explosive était importante mais que le dégazage de l'eau dû à cette vésiculation était faible, car les vésicules syn-explosives croissent majoritairement par décompression et non par diffusion. Etant donné que le dégazage du chlore est directement lié à celui de l'eau (car $D_{Cl}^{v/m} > 1$, cf. Chapitre 2), et que celle-ci n'a pas eu le temps de dégazer significativement durant une explosion vulcanienne, la concentration en chlore dans la matrice ne varie pas au cours d'une explosion. Les variations (ou non) de teneurs en H₂O et Cl entre les échantillons des produits vulcaniens proviennent donc de processus pré-explosifs.

VI.4.3 Temps de diffusion de l'eau et du chlore

Grâce à nos études texturales en 2D et en 3D, nous avons pu déterminer les origines des différentes populations de vésicules (pré- ou syn- explosives) et ainsi quantifier la vésicularité pré-explosive. Pour les bombes en croûte de pain, nous avons vu que la densité numérique de vésicules pré-explosives était quasiment nulle, la majorité des vésicules ayant disparu lors de l'effondrement du réseau de vésicules et certaines parties des bordures des bombes sont totalement denses. Pour les ponces, nous avons déterminé que seuls ~85% des vésicules de la grande population étaient pré-explosives. Considérant les densités numériques figurant dans le Tableau 7 de Giachetti et al. (soumis), la densité numérique de vésicules pré-explosives (N_v) ne dépassait pas $\sim 8,4 \times 10^9 \text{ m}^{-3}$ dans les ponces les plus vésiculées. Il est possible de calculer la distance moyenne entre les parois de deux vésicules voisines à l'aide de N_v , si on assimile les vésicules à des sphères régulièrement réparties. La distance (S) entre deux vésicules est donnée par (Lyakhovsky et al. 1996) :

$$S = 2 \sqrt[3]{\frac{3}{4\pi N_v}} \quad [60]$$

Avec S en m, et N_v en m⁻³ de verre.

Considérant les valeurs fournies précédemment nous obtenons une distance moyenne entre deux vésicules dans le magma pré-explosif de $S \sim 610 \text{ }\mu\text{m}$.

Si nous considérons que le volume de verre entre deux vésicules est en fait une tranche solide d'épaisseur L ($= S / 2$) limité par deux plans parallèles (vésicules), dans laquelle la

diffusivité (D) et la concentration initiale un élément i ($[C_{ini}]$) sont constantes, nous pouvons utiliser le modèle de conduction thermique de Carslaw et Jaeger (1959) pour déterminer la diminution de concentration en élément i ($[C]$) dans cet espace en fonction du temps (t), les équations contrôlant ces deux processus étant les mêmes. La Figure 115 montre la diminution relative de la concentration en élément i ($[C] / [C_{ini}]$) en fonction de la distance x par rapport au centre de la tranche. Les différentes courbes représentent différentes valeurs de la variable Dt / L^2 . Nous voyons sur cette Figure 115 que pour un dégazage quasiment complet en élément i sur toute l'épaisseur de la tranche, il faut que le rapport Dt / L^2 soit de l'ordre de 1 (d'où $t \sim L^2 / D$) et que, inversement, si ce rapport Dt / L^2 est $< \sim 0,01$, le dégazage est faible.

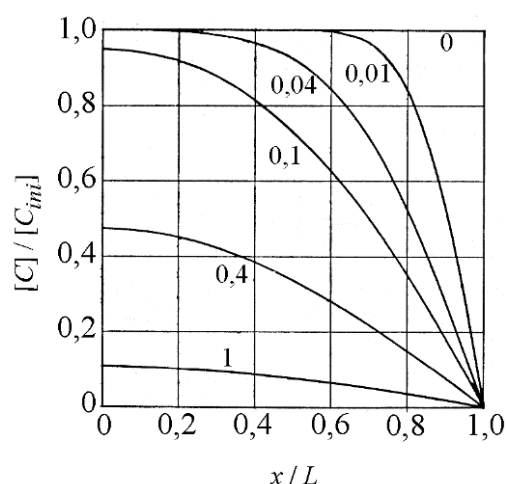


Figure 115. Profils de concentration relative en un élément i en fonction de la distance relative à la vésicule la plus proche (0 = au plus loin de la bulle la plus proche, 1 = à la paroi de la bulle) et pour différentes valeurs du rapport Dt / L^2 (valeurs notées dans le graphique). Pour une valeur de $Dt / L^2 = 1$, la concentration en élément i est très faible dans toute la tranche, montrant que le dégazage a été important.

Nous avons vu dans le Chapitre 1 que la diffusivité du chlore (D_{Cl}) dans les conditions de température à la Soufrière Hills était de $0,3$ à $4,5 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$. Celle de l'eau (D_{H_2O}) a été calculée pour les échantillons étudiés texturalement en 2D et varie entre $0,2$ et $7,7 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (cf. Giachetti et al. soumis). Considérant une longueur $L = 305 \text{ } \mu\text{m}$, nous obtenons un dégazage quasiment complet en $5,7$ à 86 h pour le chlore et $3,3$ à 130 h pour l'eau. Il est donc possible de dégazer l'eau et le chlore de façon significative pendant la durée totale de la remontée ($\sim 76 \text{ h}$; Jaquet et al. 2006) voire même pendant l'intervalle entre deux explosions vulcaniennes ($9,5 \text{ h}$; Druitt et al. 2002). En effet, la concentration en eau et en chlore peut être diminuée de moitié en moins de ~ 4 heures (calculs pour $Dt / L^2 = 0,4$ avec un D moyen).

Ce dégazage explique pourquoi les valeurs de teneurs en eau dans les verres matriciels ($0,2$ à $2,8 \text{ } \mu\text{pds}$) sont inférieures à celles obtenues dans les inclusions vitreuses ($\sim 4,3 \text{ } \mu\text{pds}$) et pourquoi on observe une variation entre les échantillons les plus superficiels dans lesquels la teneur en eau est faible ($< 0,5 \text{ } \mu\text{pds}$) et les échantillons les plus profonds pour lesquels la teneur atteint jusqu'à $2,8 \text{ } \mu\text{pds}$. Il explique aussi les flux de HCl mesuré à la Soufrière Hills (Edmonds et al. 2002) durant les périodes d'extrusion, même si quasiment aucune mesure

n'est disponible pour les périodes associées spécifiquement aux explosions vulcaniennes (Villemant et al. 2008). Cependant, ces calculs n'expliquent pas pourquoi la teneur en Cl est quasiment constante dans tous les échantillons issus des explosions vulcaniennes analysés.

VI.4.4 Modélisation du dégazage du chlore en fonction de la teneur en eau

Il est possible de modéliser assez simplement le dégazage de l'eau et du chlore au premier ordre, en systèmes ouvert ou fermé, et à l'aide de bilans de masse (e.g. Villemant et Boudon 1998; Edmonds et al. 2002 ; Villemant et al. 2008).

La fraction massique d'eau dans le verre résiduel est liée à la pression et peut être obtenue par la loi de solubilité (Villemant et al. 2008) :

$$X_{H_2O} = S_{H_2O} P_{H_2O}^n \quad [61]$$

Avec $S_{H_2O} = 0,321$ et $n = 0,54$ et $P_{H_2O}^n$ exprimé en MPa.

En système clos, la teneur en Cl est donnée par :

$$X_{Cl} = \frac{X_{Cl0}}{1 + D_{Cl}^{v/m} (X_{H_2O}^0 - X_{H_2O})} \quad [62]$$

Où X_{Cl0} et $X_{H_2O}^0$ sont les teneurs initiales respectivement en chlore et en eau dans le magma, et $D_{Cl}^{v/m}$ est le coefficient de distribution du chlore entre la phase vapeur et le liquide rhyolitique résiduel.

Pour un système ouvert dans lequel on considère que toute la phase fluide s'extrait continuellement hors du magma, la concentration du chlore dans le verre matriciel peut être décrite par les lois de distillation de Rayleigh qui se substituent de l'équation précédente. Si on considère la cristallisation négligeable, la concentration en chlore est définie par :

$$X_{Cl} = X_{Cl0} f^{\delta_{Cl}} \quad [63]$$

Avec :

$$\delta_{Cl} = D_{Cl}^{v/m} - 1 \quad [64]$$

$$f = 1 - (X_{H_2O}^0 - X_{H_2O}) \quad [65]$$

Où $1 - f$ représente la fraction d' H_2O exsolvée.

Nous pouvons alors, à l'aide de ces deux modèles différents, évaluer l'évolution de la teneur en Cl du verre matriciel par rapport à la teneur en H_2O , lors de la remontée du magma vers la surface. En utilisant des teneurs initiales en H_2O de 4,3 %pds (Barclay et al. 1998), et en Cl de 3200 ppm (Villemant et al. 2008 ; Edmonds et al. 2001 ; Harford et al. 2003), toutes deux issues de l'analyse des inclusions vitreuses, une pression initiale dans la chambre magmatique de ~ 125 MPa (Barclay et al. 1998) et des $D_{Cl}^{v/m}$ de 5 et 20 (Villemant et al. 2008), nous obtenons les trajets [Cl] en fonction de $[H_2O]$ présentés en Figure 116. Ces trajets sont très proches pour les deux types de systèmes (clos et ouvert) car la microcristallisation est ici négligée.

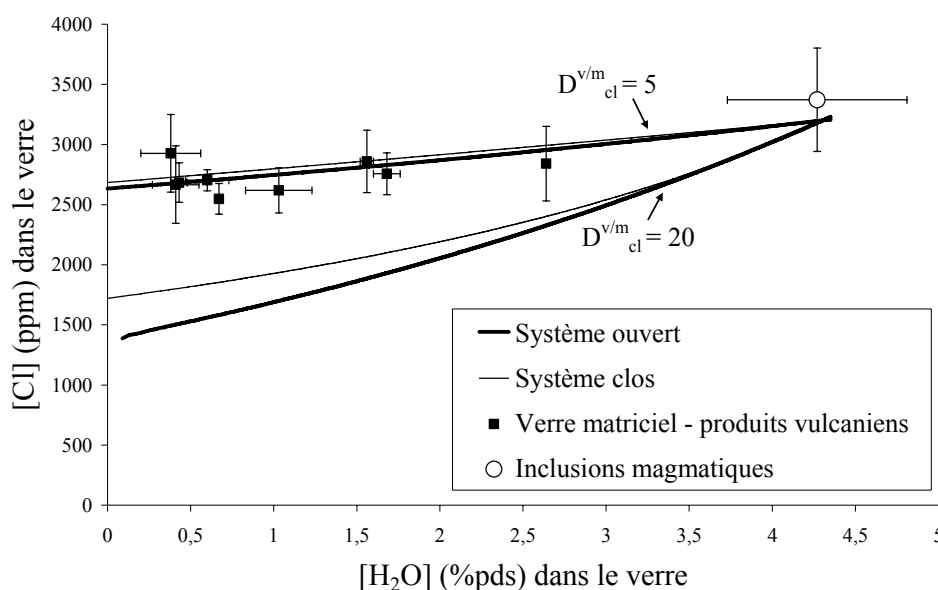


Figure 116. Evolution de la teneur en Cl du liquide résiduel en fonction de la teneur en H_2O lors de la remontée du magma depuis la chambre magmatique à ~ 125 MPa jusqu'à la surface. Les données des inclusions vitreuses proviennent de Devine et al. (1998).

La Figure 116 montre que nos données peuvent être expliquées par un dégazage en système ouvert ou fermé avec un coefficient de partage du chlore entre la phase vapeur et le magma proche de 5, si on ne tient pas compte de la cristallisation durant le dégazage en système ouvert. Des valeurs faibles de $D_{Cl}^{v/m}$ (10-20) ont déjà été déduites d'études sur le dégazage de liquide rhyolitiques riches en H_2O (Villemant et Boudon 1999 ; Villemant et al. 2003 ; Villemant et al. 2008).

Cependant, le comportement du chlore lors du dégazage semble plus complexe et certains processus ne sont pas pris en compte dans ces modèles simples. En système ouvert, la cristallisation de microlites va faire augmenter la concentration en chlore dans le liquide (Villemant et al. 2003) du fait de l'incompatibilité de cet élément avec les microlites qui cristallisent à la Soufrière Hills (essentiellement plagioclases et magnétites comme le

confirment les données de spectrométrie Raman). Parallèlement, le chlore va aussi s'exsolver dans la phase fluide, diminuant ainsi la concentration en Cl dans le liquide résiduel. En bilan, la concentration en chlore dans le verre résiduel va donc dépendre d'une compétition entre le taux de dégazage et la vitesse de cristallisation des microlites.

VI.5. Conclusion

Les analyses chimiques effectuées ont permis dans un premier temps de confirmer les fortes teneurs en eau ($> 2,5$ %pds) mesurées par Burgisser et al. (soumis, a) dans certaines des ponces les plus vésiculées. Elles ont aussi confirmé la forte corrélation qui existe entre le type textural (dérivé de la profondeur pré-explosive de l'échantillon) et la teneur en eau dans le verre résiduel. Elles soutiennent l'hypothèse d'un dégazage en système clos depuis la chambre magmatique jusqu'à une profondeur de ~ 3 km (Burgisser et al. soumis, a), puis d'un dégazage en système partiellement ouvert entre deux explosions ($\sim 9,5$ h) pour la partie supérieure du conduit. Les spectres Raman renforce aussi les densités numériques élevées de microlites de magnétite, mesurées lors des analyses texturales.

La teneur en chlore du verre matriciel est globalement constante dans tous les échantillons, aucune variation avec la texture ou la vésicularité n'étant observée. Des calculs de diffusion démontrent qu'il y a eu un dégazage en chlore lors de la remontée du magma depuis la chambre. Des modélisations simples du dégazage semble montrer que le dégazage a pu se faire en système clos ou ouvert, mais implique nécessaire un coefficient de partage faible du chlore entre la phase vapeur et le liquide résiduel (~ 5). Ce modèle, certes simple, est en accord avec le système de dégazage proposé par Burgisser et al. (soumis, a). Il demande à être amélioré pour tenir compte quantitativement des cristaux et du comportement de l'eau et du chlore vis-à-vis de la cristallisation des microlites.

Synthèse : Vésiculation et dynamisme
de conduit lors des explosions
vulcaniennes du volcan Soufrière Hills,
1997 (Montserrat).

Cette dernière partie du manuscrit a pour but de rassembler les principales conclusions émanant du travail effectué et de les confronter à des modèles de conduit envisageables pour expliquer les explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills en 1997. Dans un premier temps, nous récapitulons les principales méthodes utilisées et avancées techniques et méthodologiques réalisées, et proposons des pistes pour améliorer les outils disponibles. Nous exposons ensuite les résultats d'une étude sur le profil pré-explosif du conduit en termes de vésicularité (Burgisser et al. (soumis, a, b), qui tient compte de nos conclusions majeures concernant la vésiculation. Puis nous rassemblons les grandes conclusions issues des différents chapitres. Différents modèles de dynamique de conduit envisageables sont ensuite présentés, et une liste des observations que nous avons faites et qui soutiennent ou au contraire discréditent les différents modèles est dressée, afin d'établir un modèle pouvant expliquer les observations effectuées. Enfin, nous proposons des perspectives de travail suite aux résultats de notre étude.

Avancés technologiques et méthodologiques

- Les comparaisons entre les textures de nombreux échantillons de ponces et de bombes en croûte de pain directement sur le terrain nous ont permis de mieux interpréter les différentes populations de tailles de vésicules. L'utilisation d'une simple meuleuse portable nous aussi a permis de réaliser beaucoup d'observations directement sur le terrain et ainsi d'accélérer et optimiser l'échantillonnage. De mon point de vue, ce type d'outil permettant d'investiguer rapidement la texture de nombreux échantillons directement sur le terrain demande à être développé. La mise sur le marché très récente de numériseurs 3D portables, légers et de grande précision ($\pm 50 \mu\text{m}$) demande à être exploitée par la volcanologie de terrain. Cet outil nous aurait par exemple permis d'analyser en détail les fractures des bombes en croûte de pain afin d'en connaître leur volume, leur forme, etc. plus rapidement que par les techniques d'immersion et d'analyses d'images (Chapitre 5) et directement sur le terrain, permettant une collection de données beaucoup plus importante.

- Nos distributions de tailles de vésicules (Chapitres 3 et 4) constituent, à notre connaissance, les premières données quantitatives concernant les processus de vésiculation dans les produits d'explosions vulcaniennes. De plus, l'association de ces données concernant les vésicules avec les densités numériques de magnétite sur les mêmes échantillons nous a permis de quantifier le processus de nucléation hétérogène.

- La méthodologie de recouvrement utilisée pour combiner les distributions de tailles de vésicules et de cristaux de tous les grossissements a été mise au point durant cette thèse. Elle est certes légèrement plus contraignante que la méthode classique (e.g. Shea et al. accepté), mais a l'avantage de donner des porosités très proches de celles obtenues par pycnométrie à hélium, et ne nécessite aucune correction des distributions de volumes a posteriori. De plus, cette méthodologie de recouvrement convient à la fois aux données 2D et aux données 3D (Chapitre 4).

- L'application de la microtomographie à rayons X sur des échantillons de type vulcanien n'avait jamais été effectuée (Chapitre 4). De plus, l'utilisation d'une résolution de $\sim 0,37 \mu\text{m px}^{-1}$ nous a permis d'identifier les vésicules les plus petites dans nos échantillons, ainsi que les parois les plus fines entre les vésicules.

- L'obtention de données quantitatives à l'aide de la microtomographie à rayons X appliquée sur des échantillons contenant autant de vésicules (de l'ordre de 10^{15} m^{-3}) a constitué un challenge (Chapitre 4). Néanmoins, pour la première fois à notre connaissance, des distributions de tailles de vésicules, de cristaux et d'oxydes ont été réalisées en 3D sur une large partie de la gamme de tailles présentes (de $\sim 2 \mu\text{m}$ jusqu'à 1 mm), à l'aide la combinaison de données provenant de trois acquisitions à des résolutions spatiales différentes.

- La comparaison entre les distributions de tailles effectuées sur les mêmes échantillons avec les deux techniques d'analyses (2D et 3D) nous a permis de vérifier la cohérence de la méthode microtomographique.

- L'utilisation du programme 3DMA-Rock nous a permis de discuter quantitativement du processus de coalescence en trois dimensions et de produire des distributions de taille de constriction. Ceci n'avait déjà été réalisé que très récemment par Degruyter et al. (2009) sur des échantillons de l'éruption du Kos Plateau Tuff. Le programme 3DMA-Rock est très performant et dispose de beaucoup d'options. Néanmoins, il échoue encore à diviser certaines vésicules très complexes présentes dans nos échantillons.

- L'utilisation quantitative de la microspectrométrie Raman pour l'obtention de teneur en eau dans des verres rhyolitiques demande à être plus largement appliquée (Chapitre 6). Nos résultats montrent que s'il est parfois difficile de trouver des plages homogènes de verre pur dans des échantillons fortement microcristallisés, la facilité de préparation et d'acquisition de cette technique en font un outil très utile pour la mesure ponctuelle de l'eau dans les verres volcaniques. De plus, la comparaison avec des données en

eau sur les mêmes échantillons mais issues de mesures par titration Karl Fisher (Burgisser et al. soumis) montrent une bonne corrélation entre les deux méthodes.

Profils de conduit pré-explosif

Certains de nos résultats ont été utilisés par Burgisser et al. (soumis, a et b) afin de mieux contraindre les profils de vésicularité et de (sur)pression dans l'ensemble du conduit, juste avant chaque explosion vulcanienne de 1997. A l'aide de mesures de teneurs en eau dans des verres résiduels, des pressions pré-explosives calculées par Clarke et al. (2007), et d'un modèle numérique tenant compte de la majorité de nos conclusions, ces auteurs ont pu établir des profils pression pré-explosive/vésicularité pré-explosive mais aussi vésicularités pré-explosives/profondeur assez détaillé (Figure 117). Comme expliqué dans le Chapitre 1 de ce manuscrit, ils ont modélisé numériquement trois types de processus pouvant engendrer les surpressions observées (élasticité des parois du conduit, cristallisation de microlites et écoulement du magma). A l'aide du profil de cette surpression et du profil présenté en Figure 117a, ils ont établi les profils vésicularité pré-explosive/profondeur présentés en Figure 117b, selon le mécanisme de surpression envisagé.

Le conduit comprend à son extrémité supérieure un bouchon dégazé et dense, dont l'épaisseur est de l'ordre de quelques mètres à quelques dizaines de mètres tout au plus, et qui scelle le reste du conduit. En-dessous de ce bouchon et jusqu'à une pression de ~10 MPa (200 à 500 m selon le mécanisme de surpression invoqué) se trouve une zone très hétérogène en termes de gaz exsolvé (magma variant de 0 jusqu'à quasiment 70% de vésicularité), expliquant peut être la nature pulsatile des jets vulcaniens durant les premières secondes de chaque explosion. Enfin, plus en profondeur et jusqu'à une pression de 80 MPa (~3,5 km) se trouve une zone beaucoup plus homogène et plus dense (10-20 % vol), riche en gaz, et qui s'est mise en place en grande partie en conditions de système ouvert.

Nos données de teneurs en eau dans les verres résiduels étant en accord avec celles de Burgisser et al. (soumis), et leurs modèles tenant compte explicitement ou implicitement des principales conclusions de notre étude, nous pensons que la Figure 117b représente le profil de vésicularité dans le conduit, juste avant chaque explosion vulcanienne.

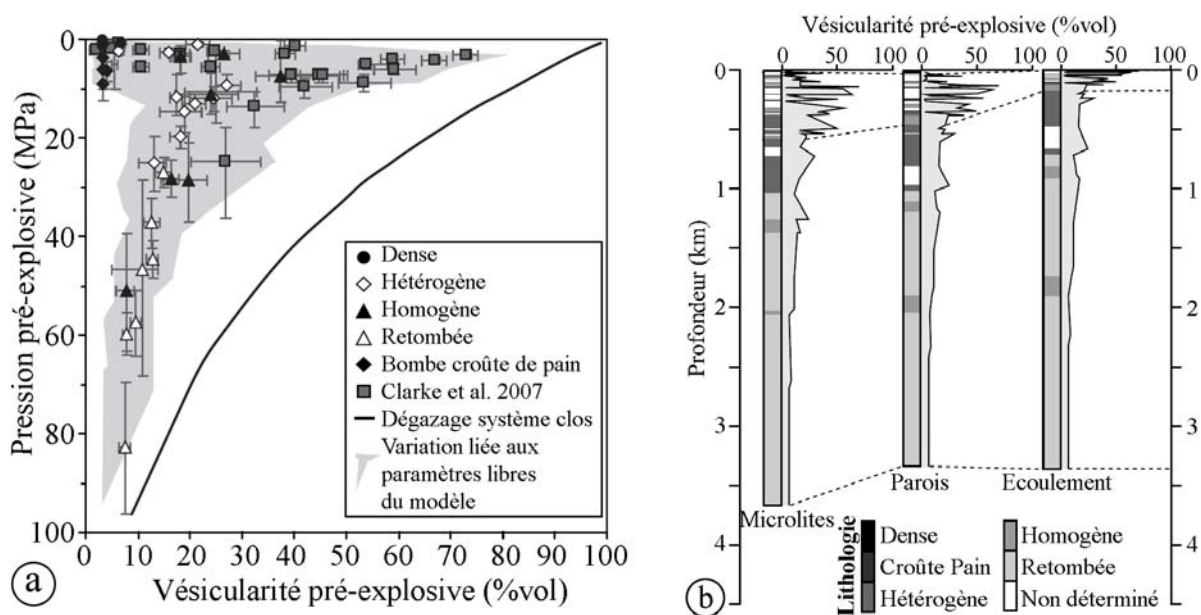


Figure 117. Profils de vésicularités pré-explosives en fonction (a) de la pression ou (b) de la profondeur (modifié de Burgisser et al. soumis a et b). Dans b), les trois profils correspondent aux trois mécanismes de surpression testés par Burgisser et al. (soumis, b).

Principales conclusions de notre étude

- Notre étude s'est concentrée sur les deux séries d'explosions vulcaniennes ayant eu lieu sur le volcan Soufrière Hills en 1997, à Montserrat. Une étude texturale générale de l'ensemble des produits ainsi qu'une étude détaillée en 2D et 3D des vésicules et cristaux de quelques échantillons caractéristiques, nous ont permis de mieux contraindre le processus de vésiculation lié à ces explosions. L'analyse texturale d'une série de bombes en croûte de pain, qui constituent une texture caractéristique des explosions vulcaniennes, complète ces études. Enfin, les analyses chimiques réalisées confortent en majorité les données mais demandent à être complétées. L'un des aspects les plus importants de cette étude est qu'elle a eu lieu sur des explosions dont les paramètres principaux étaient déjà bien quantifiés par d'autres études, permettant d'obtenir de nombreuses contraintes pour notre travail. De plus, ces explosions ont produit une très large gamme de textures dans des échantillons possédant des conditions initiales de confinement, ainsi que des histoires thermiques, très différentes les unes des autres, permettant de nombreuses comparaisons indispensables à l'interprétation des distributions de tailles des vésicules. Les principales conclusions des différentes parties de cette thèse sont :

- Les produits des explosions vulcaniennes montrent un très large spectre de textures, depuis des échantillons denses et des bombes en croûte de pain peu vésiculés (0 à ~60 %) jusqu'à des ponces contenant plus de 75 % de bulles. Ce large spectre de textures est

directement lié aux processus de vésiculation pré- et syn- explosifs et donc à la position pré-explosive des échantillons dans le conduit, ainsi qu'à leur histoire thermique à l'intérieur, et à l'extérieur du conduit.

- Avant l'explosion vulcanienne, la partie supérieure du conduit se comporte en système ouvert, expliquant la différence de teneur en eau entre les échantillons de surface dégazé et les ponces en profondeur, plus riches en eau.

- La vésicularité observée dans tous les échantillons se décompose en quatre populations distinctes : (1) de larges ($> 200 \mu\text{m}$) pores angulaires syn-explosifs liés à la fracturation de phénocristaux ; (2) de larges ($> 200 \mu\text{m}$) vésicules pré-explosives souvent allongées ; (3) de petites ($< 40\text{-}50 \mu\text{m}$) vésicules sphéroïdales syn-explosives en partie isolées ; (4) des vésicules intermédiaires syn-explosives car formées par la coalescence des petites vésicules.

- Dans les intérieurs des bombes en croûte de pain, on ne retrouve que les vésicules de type 1 et 3. Dans les ponces, on identifie des vésicules de type 2, 3 et 4, les pores angulaires de type 1 étant assez rares. Les ponces issues de coulées pyroclastiques et celles issues des retombées présentent les mêmes distributions de tailles de vésicules, malgré une histoire thermique différente à la sortie du conduit.

- La proportion de vésiculation syn-explosive dans les échantillons est importante (jusqu'à 100% dans les bombes en croûte de pain et $\sim 30\%$ dans les ponces) et implique donc des vésicularités pré-explosives plus faibles que les vésicularités finales mesurées.

- La vésicularité pré-explosive des échantillons proches de la surface (bouchon dégazé et bombe en croûte de pain) est quasiment nulle, comme l'attestent les bordures de certaines bombes. Pour les échantillons plus profonds (futures ponces), il reste des vestiges d'un réseau de grandes vésicules créées lors de la remontée du magma depuis la chambre, représentant une vésicularité pouvant atteindre 55 %vol.

- La nucléation syn-explosive de bulles est déclenchée par la propagation de la décompression, liée à la rupture d'un bouchon dégazé présent à la surface du conduit. La nucléation de bulles se fait de façon hétérogène dans tous les échantillons, sur des microlites de magnétite présents en très grand nombre ($0,8\text{-}2 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$).

- La densité numérique de vésicules dans les échantillons varie de $6,6 \times 10^{14}$ à $\sim 67 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ selon la technique et l'échantillon considérés. Ces densités numériques impliquent des taux de décompression de 0,3 à 6,5 MPa s^{-1} pour une nucléation hétérogène,

valeurs cohérentes avec les modèles numériques de Melnik et Sparks (2002) pour ces explosions vulcaniennes de 1997 à la Soufrière Hills.

- Une fois nucléées, les vésicules syn-explosives croissent majoritairement par décompression.
- La coalescence entre les vésicules se produit avec plus ou moins d'importance selon le délai entre la nucléation et la trempe de l'échantillon, c'est-à-dire selon la position pré-explosive de l'échantillon dans le conduit. Les échantillons d'origine plus profonde (ponces) sont généralement ceux qui montrent une coalescence plus développée.
- La coalescence affecte quasiment toutes les vésicules dès qu'elles dépassent quelques dizaines de microns. Les bulles coalescent avec leurs voisines les plus proches, quelles que soient leurs tailles.
- Dans les bombes en croûte de pain les plus superficielles, la nucléation et croissance des vésicules (et donc la vésicularité totale) est limitée dans la partie extérieure tandis que l'intérieur protégé thermiquement peut vésiculer plus largement. Son expansion provoque la fracturation de la bordure rigide, créant la texture croûte de pain. Dans les bombes d'origine plus profonde, la bordure et l'intérieur sont plus vésiculés en raison du délai plus long entre la nucléation et la trempe.
- Dans les ponces, d'origine encore plus profonde, la majorité de la vésiculation est acquise avant la fragmentation, ce qui est attesté par la présence de ponces de retombée tabulaires non gonflées et qui présentent quantitativement la même texture que les ponces issues des coulées pyroclastiques, malgré une histoire thermique différente après l'expulsion hors du conduit.
- La fracturation d'amphiboles dans les bombes en croûte de pain peut constituer jusqu'à 40% de la vésicularité et pourrait être due en partie à l'explosion d'inclusions fluides présentes dans le cristal lors de la décompression brutale.
- Dans les ponces, il existe des amphiboles alignées dans le plan de foliation qui sont boudinées de façon uniaxiale, fracturées perpendiculairement à leur longueur. La quantification de ce boudinage uniaxial des amphiboles nous a permis à la fois de calculer l'importance de la vésiculation syn-explosive du magma, mais aussi de déterminer qu'elle avait eu lieu en grande partie avant la fragmentation, au moins dans ces ponces, confirmant l'importance de la vésiculation syn-explosive avant la fragmentation.

- Toutes ces observations et conclusions quantifient de manière précise le processus de vésiculation du magma avant et durant une explosion vulcanienne moyenne de la Soufrière Hills en 1997.

Dynamiques de conduit possibles lors d'une explosion vulcanienne moyenne

Nous avons confronté plusieurs modèles simples de dynamisme de conduit à nos observations afin de préciser les mécanismes envisageables se produisant dans le conduit lors d'une explosion vulcanienne moyenne de 1997 à la Soufrière Hills. Nous considérons, quelque soit le modèle que, sur la durée d'une explosion vulcanienne, la remontée du magma depuis la chambre en base de conduit est négligeable par rapport à la vitesse de la décompression et de la fragmentation. Nous nous intéressons aux ~3 km premiers kilomètres du conduit, c'est-à-dire à la partie vidangée lors d'une seule explosion. Le profil de conduit pré-explosif est considéré comme étant celui décrit précédemment. Le magma est schématiquement dense dans la partie superficielle et quelques vésicules pré-explosives produites lors de la remontée depuis la chambre subsistent dans les parties inférieures.

Modèle 1

Le premier modèle (Figure 118) envisagé est un modèle de conduit classique (Melnik et Sparks 2002) dans lequel le niveau de fragmentation (1) est bien défini et migre vers la base du conduit, se propageant dans un magma déjà fortement vésiculé (2) et provoquant simultanément la fracturation du magma (3), puis son éjection hors du conduit (4). Dans un tel scénario, tout le gaz est exsolvé à un niveau bien défini.

Modèle 2

Le deuxième modèle (Figure 118) implique la fragmentation in situ du magma dans le conduit lors de la propagation d'une vague de décompression liée à la rupture du bouchon dégazé (1). Chaque parcelle de magma individualisée peut ensuite vésiculer et s'expanser librement (2). Ce modèle implique que la fragmentation ne se produit pas à un niveau bien défini mais de façon généralisée dans une large partie du conduit (3). L'accélération des particules vers la surface les font se séparer les unes des autres, entraînant une baisse de concentration de la mixture gaz + particules en remontant dans le conduit. Dans ce scénario, le gaz est exsolvé du magma au fur et à mesure que les parcelles de magma se fracturent, créant ainsi une libération plus ou moins continue au cours de l'explosion.

Modèle 3

Dans ce modèle (Figure 118), on considère que la rupture du bouchon dégazé provoque la propagation d'une vague de nucléation hétérogène très rapidement vers la base du conduit. L'expansion en état visqueux du magma causée par la croissance de ces vésicules syn-explosives se produit vers le haut (1) en raison de l'impossibilité du magma de s'expanser latéralement et vers le bas. Cette expansion de la colonne magmatique alimente une zone de fragmentation (2) qui, dans ce cas extrême, se stabilise à une profondeur constante. Cette surface de fragmentation est dans ce modèle bien définie.

Modèle 4

Ce dernier modèle (Figure 118) est intermédiaire entre les modèles 1 et 3. Il invoque une zone de nucléation causée par la propagation rapide d'une vague de décompression (1) liée à la rupture du bouchon dégazé, sous la vague de fragmentation (2) (modèle de Massol et Koyaguchi 2005). L'épaisseur de cette zone augmente avec la profondeur lors de la propagation des deux vagues. Dans ce modèle, le niveau de fragmentation est bien défini et le magma fragmenté est de plus en plus vésiculé, en raison du délai augmentant entre la nucléation de bulles et la fragmentation du magma. Cette zone a le temps d'être quelque peu expansée avant le passage de l'onde de fragmentation.

Modèle envisagé

Certaines de nos conclusions détaillées précédemment permettent de rejeter ou d'envisager certains aspects des différents modèles présentés :

La vésiculation syn-explosive est très importante durant les explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills en 1997. La proportion de vésicules syn-explosives atteint jusqu'à 30% dans les ponces et 100% dans certaines bombes en croûte de pain.

L'importance de la vésiculation syn-explosive pré-fragmentation est supportée à la fois par la présence d'amphiboles boudinées uniaxialement dans certaines ponces vésiculées, ainsi que par la similitude des textures des ponces de retombée et celles issues des coulées pyroclastiques, malgré une histoire thermique différente après l'éjection hors du conduit.

Sur ces deux observations, nous pouvons rejeter le modèle 1 car il n'implique aucune vésiculation syn-explosive du magma.

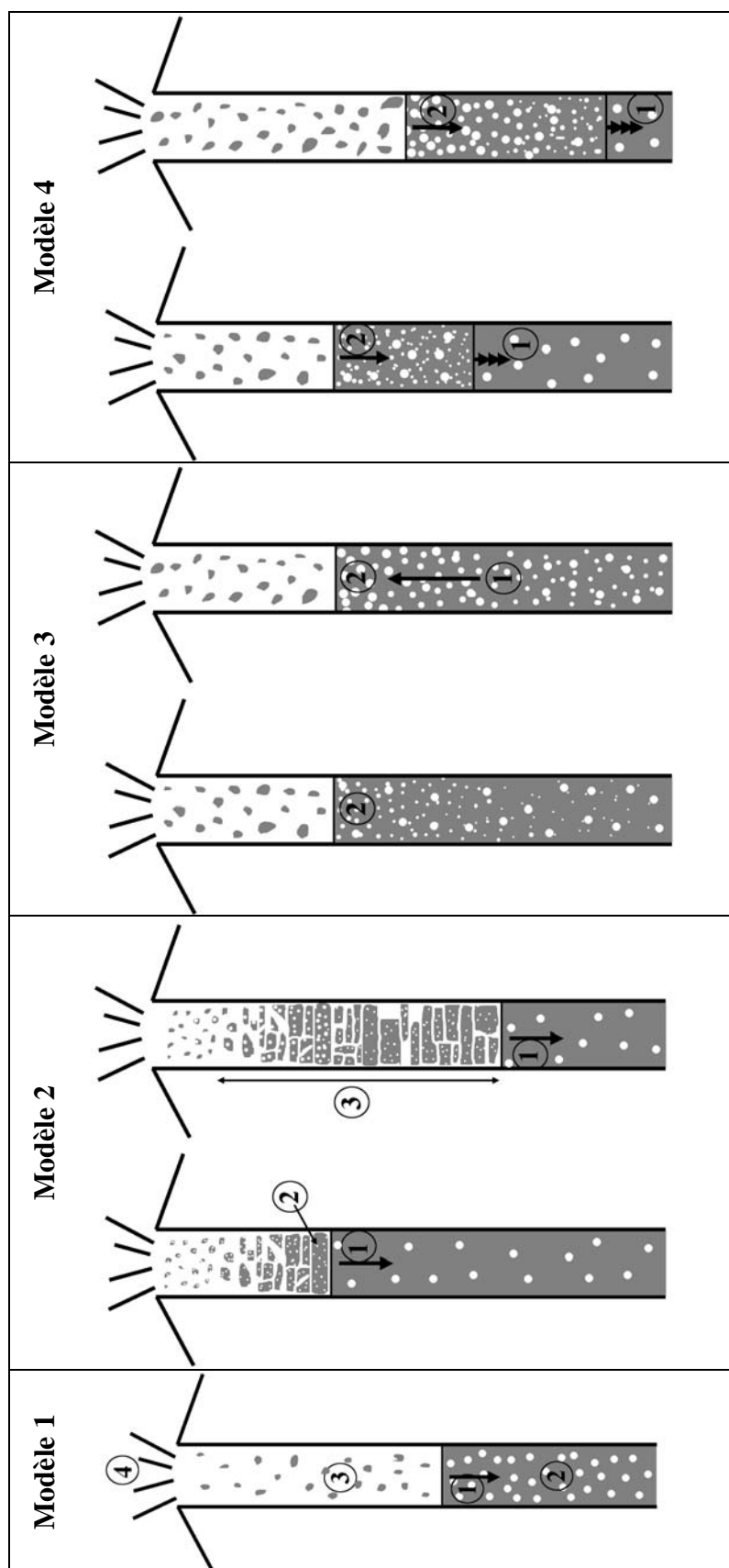


Figure 118. Modèles de conduit théoriques envisageables pour le dynamisme des explosions volcaniennes de La Soufrière Hills en 1997.

De ces deux observations, nous pouvons aussi conclure que la colonne s'est nécessairement expansée avant la vague de fragmentation. Etant donné que son expansion est très limitée sur les côtés en raison de la présence des parois du conduit et qu'elle est aussi limitée vers la base du conduit, son expansion s'est logiquement produite vers le haut. Les modèles 3 et 4 sont donc envisageables. Cependant, la vague de fragmentation se produit durant les premières dizaines de secondes de chaque explosion (~50 s ; Druitt et al. 2002). Si nous considérons qu'elle vidange le conduit sur ~3,5 km, sa vitesse moyenne est de $\sim 70 \text{ m s}^{-1}$. Si nous considérons, comme dans le modèle 3, que la zone de fragmentation est entièrement alimentée par l'expansion de la colonne magmatique, cela implique que l'écoulement visqueux du magma par expansion se produit avec une accélération $> 1 \text{ m s}^{-2}$. Il semble peu probable que cette expansion puisse être accommodée de façon ductile par toute la colonne de magma visqueux. Lors de son expansion sous l'effet de la croissance des vésicules, la partie supérieure de la colonne (qui subit le plus de déformation verticale) est sans doute fragmentée sur une certaine épaisseur, puis le magma est éjecté hors du conduit, comme dans le modèle 2.

En résumé, nous pensons, que la rupture du bouchon dégazé entraîne la propagation dans le conduit d'une vague de décompression très rapide qui provoque la nucléation hétérogène de bulles sur des microlites de magnétite. Cette vague de décompression est suivie d'une vague de fragmentation, plus lente. En descendant dans le conduit, le délai entre ces deux vagues augmente, permettant une vésiculation plus importante. Cette vésiculation entraîne une expansion de la colonne qui a lieu vers le haut du conduit. Cette expansion ne peut être accommodée totalement par écoulement visqueux, et dans la partie supérieure de la colonne se produit une zone dans laquelle le magma est fragmenté. Ce modèle, intermédiaire entre les modèles 2, 3 et 4, est envisageable dans le cas des explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills car il permet d'expliquer la présence d'amphiboles boudinées uniaxialement dans les ponces profondes, par accommodation cassante de la déformation du magma liée à l'expansion des vésiculées syn-explosive. Il permet aussi d'expliquer l'augmentation de la vésicularité finale des échantillons avec la profondeur de confinement avant chaque explosion, les ponces plus profondes ayant le temps de nucléer, croître et coalescer plus de vésicules que les échantillons denses ou les bombes en croûte de pain.

Perspectives futures

Il existe de nombreuses perspectives à ce travail. En voici trois :

La première est méthodologique. Nous avons démontré la puissance potentielle de la microtomographie à rayons X dans l'étude des textures complexes des pyroclastes volcaniques. Cette technique permet une vision complète du système en 3D et semble pouvoir fournir des données quantitatives, à la fois sur le phénomène de nucléation via la production de densité numérique de bulles (certes faisable en 2D), mais aussi et surtout sur le phénomène de coalescence, dont l'étude en 2D n'autorise qu'une vision très limitée. Cette méthode demande à être développée, notamment dans la production d'algorithmes plus performants, peut être même spécialement adaptés au cas de vésicules dans un magma silicaté. Je pense que d'ici quelques années cette méthode sera assez bien contrainte pour être utilisée en routine, à la fois sur les échantillons naturels mais aussi expérimentaux. Elle pourrait permettre une quantification systématique de certains paramètres indispensables aux modèles numériques notamment.

Une deuxième perspective serait de multiplier le type d'étude de la vésiculation du magma que nous avons réalisée sur d'autres explosions vulcaniennes. Celles du Guagua Pichincha en Equateur (1999) pourraient être une bonne cible. En effet, elles semblent différentes des explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills par les proportions relatives des produits émis (plus de bombes en croûte de pain qu'à Montserrat) et des intervalles de temps entre explosions plus longs. Il est possible que ces deux observations puissent être directement liées l'une à l'autre. La comparaison entre les échantillons d'explosions vulcaniennes différentes pourraient donner des informations sur le comportement général d'une explosion vulcanienne et des paramètres fondamentaux qui la contrôlent. Cependant, si nous avons pu dire tant de choses sur la vésiculation du magma durant les explosions vulcaniennes de la Soufrière Hills en 1997, c'est notamment parce qu'elles étaient très bien contraintes grâce à de nombreuses observations et études dans tous les domaines de la volcanologie. Il faudrait pouvoir bénéficier de la même littérature pour d'autres explosions.

Enfin, lorsque le dynamisme de conduit durant une explosion vulcanienne sera bien contraint, il pourrait être envisageable de comparer quantitativement ce dynamisme à ceux contrôlant l'effusion d'un dôme de lave visqueuse et une éruption plinienne. En effet, l'explosion vulcanienne est, en intensité, intermédiaire à ces deux types de dynamismes. Il serait intéressant d'étudier si les processus de vésiculation du magma contrôlant les explosions vulcaniennes et mis en évidence dans cette thèse sont eux aussi intermédiaires.

Références bibliographiques

A

- Adams, N.K., Houghton, B.F., Hildreth, W., 2006. Abrupt transitions during sustained explosive eruptions: examples from the 1912 eruption of Novarupta, Alaska. *Bull. Volcanol.* 69, 189-206.
- Aiuppa, A., 2009. Halogens in Volcanic Systems and Their Environmental Impacts. *Chem. Geology*. 263, 99-109.
- Alidibirov, M., 1994. A model for viscous magma fragmentation during volcanic blasts. *Bulletin of Volcanology* 56, 459-465.
- Alidibirov, M.A., Dingwell, D.M., 1996. An experimental facility for the investigation of magma fragmentation by rapid decompression. *Bull. Volcanol.* 58 (5), 411-416.
- Allard, P., Carbonnelle, D., Dajlevic, D.N., Métrich, N., Sabroux, J.C., 1997. The volatile source and magma degassing budget of Merapi volcano: evidence from high-temperature gas emissions and crystal melt inclusions. Paper presented at Merapi Volcano Decade International Workshop, UNESCO-VSI, Yogyakarta, Oct 5-9, 1995.
- Allard, P., Burton, M., Murè, F., 2005. Spectroscopic evidence for a lava fountain driven by previously accumulated magmatic gases, *Nature* 433, 407-410.
- Alletti, M., Baker, D.R., Freda, C., 2007. Halogen diffusion in a basaltic melt, *Geochim. Cosmochim. Acta* 71. 3570-3580.
- Anderko, A., Pitzer, K.S., 1993. Equation-of-state representation of phase equilibria and volumetric properties of the system NaCl-H₂O above 573 K, *Geochim. Cosmochim. Acta* 57 (8) (1993), pp. 1657-1680.
- Anderson, A.T. Jr., 1975. Some basaltic and andesitic gases. *Rev. Geophys. Space Physics.* 13, 37-55.
- Anderson, A.T. Jr, Newman, S., Williams, S.N., Druitt T.H., Skirius, C., Stolper, E., 1989. H₂O, CO₂, Cl and gas in Plinian and ash-flow Bishop rhyolite. *Geology*. 17, 221-225.
- Andreieff, P., Bouysse P., Westercamp, D., 1987. Géologie de l'arc insulaire des Petites Antilles et évolution géodynamique de l'Est-Caraïbe. – Thèse, Bordeaux I.
- Anishchik, S., Medvedev, N., 1995. Three-dimensional apollonian packing as a model for dense granular systems. *Phys. Rev. Lett.* 75, 4314-4317.
- Arciniega-Ceballos, A., Chouet, B.A., Dawson, P., 1999. Very long-period signals associated with vulcanian explosions at Popocatepetl Volcano, Mexico. *Geophys. Res. Lett.* 26, 3013-3016.

B

- Bacon, C.R., Newman, S., Stolper, E., 1992. Water, CO₂, Cl, and F in melt inclusions in phenocrysts from three Holocene explosive eruptions, Crater Lake, Oregon. *Am. Mineral.* 77, 1021-1030.
- Bagdassarov, N.S., Dingwell, D.B., Webb, S.L. 1994. Viscoelasticity of crystal- and bubble-bearing rhyolite melts. *Phys. Earth. Planet. Inter.* 83, 83-89.
- Baker, D.R., Balcone-Boissard, H., 2009. Halogen diffusion in magmatic systems: Our current state of knowledge. *Chemical Geology*. 263, 82-88.
- Balcone-Boissard, H., Baker, D.R., Villemant, B., Boudon, G., 2009. F and Cl diffusion in phonolitic melts: Influence of the Na/K ratio. *Chem. Geology*. 263:89-98.
- Barclay, J., Riley, R.S., Sparks, R.S.J., 1995. Analytical models for bubble growth during decompression of high viscosity magmas, *Bull. Volcanol.* 57, 422-431.
- Barclay, J., Rutherford, M.J., Carroll, M.R., Murphy, M.D., Devine, J.D., Gardner, J., Sparks, R.S.J., 1998. Experimental phase equilibria constraints on pre-eruptive storage conditions of the Soufrière Hills magma. *Geophys. Res. Lett.* 25 (18), 3437-3440.

- Behrens, H., Jantos, N., 2001. The effect of anhydrous composition on water solubility in granitic melts, *Am. Mineral.* 86:14–20.
- Behrens, H., Zhang, Y., Xu, Z., 2004. H₂O diffusion in dacitic and andesitic melts. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 68, 5139–5150.
- Bennett, F.D., 1974. On volcanish ash formation. *Am. J. Sci.* 274, 648–661.
- Bernard, M.L., Zamora, M., Geraud, Y., Boudon, G., 2007. Transport properties of pyroclastic rocks from Montagne Pelee volcano (Martinique, Lesser Antilles). *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* 112(B5).
- Blank, J.G., Stolper, E.M., Carroll, M.R., 1993. Solubilities of carbon dioxide and water in rhyolitic melt at 850°C and 750 bars. *Earth Planet. Sci. Lett.* 119:27–36.
- Blank, J.G., Gardner, J.E., Jaupart, C., 1994. Degassing and fragmentation histories of erupted magmas: evidence from matrix glass in pumice (abstract). *Eos, Trans. Am. Geophys. Union.* 75, 719.
- Blundy, J., Cashman, K., 2001. Ascent-driven crystallisation of dacite magmas at Mount St Helens, 1980–1986, *Contrib. Mineral. Petrol.* 140, 631–650.
- Blower, J.D., Keating, J.P., Mader, H.M., Phillips, J.C., 2001a. Inferring degassing processes from vesicle size distributions. *Geophys. Res. Lett.* 28, 347–350.
- Blower, J.D., Mader, H.M., Wilson, S.D.R., 2001b. Coupling of viscous and diffusive controls on bubble growth during explosive volcanic eruptions, *Earth Planet. Sci. Lett.* 193, 47–56.
- Blower, J.D., Keating, J.P., Mader, H.M., Phillips, J.C., 2002. The evolution of bubble size distributions in volcanic eruptions, *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 120, 1–23.
- Blundy, J., Cashman, K., 2001. Ascent-driven crystallisation of dacite magmas at Mount St Helens, 1980–1986, *Contrib. Mineral. Petrol.* 140 : 631–650.
- Bonadonna, C., Mayberry, G.C., Calder, E.S., Sparks, R.S.J., Choux, C., Jackson, P., Lejeune, A.M., Loughlin, S.C., Norton, G.E., Rose, W.I., Ryan, G., Young, S.R., 2002. Tephra fall out in the eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: T.H. Druitt and B.P. Kokelaar, Editors, *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999*, Geological Society of London Memoir vol. 21, 483–516.
- Botcharnikov, R.E., Shmulovich, K.I., Tkachenko, S.I., Korzhinsky, M.A., Rybin, A.V., 2003. Hydrogen isotope geochemistry and heat balance of a fumarolic system: Kudriavy volcano, Kuriles. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 124, 45–66.
- Bouvet de Maisonneuve, C., Bachmann, O., Burgisser, A., 2008. Characterization of juvenile pyroclasts from the Kos Plateau Tuff (Aegean Arc): insights into the eruptive dynamics of a large rhyolitic eruption, *Bulletin of Volcanology*.
- Bouysse, P., Andreieff, P., Richards, M., Baubron, J.-C., Mascle, A., Maury, R.C., Westercamp, D., 1985. Aves swell and northern Lesser Antilles ridge: rock dredging results from Arcante 3 cruise. In: Mascle A (ed) *Géodynamique des Caraïbes. Proc Symp Géodynamique des Caraïbes*, Paris. Technip, Paris 65–76.
- Briden, J.C., Rex, D.C., Faller, A.M., Tomblin, J.F., 1979. K–Ar geochronology and paleomagnetism of volcanic rocks in the Lesser Antilles island arc, *Philos. Trans. R. Soc. Lond.* 291, 485–528.
- Bureau, H., Keppler, H., Metrich, N., 2000. Volcanic degassing of bromine and iodine: experimental fluid/melt partitioning data and application to stratospheric chemistry. *Earth Planet. Sci. Lett.* 183, 51–55.
- Bureau, H., Métrich, N., 2003. An experimental study of bromine behaviour in water-saturated silicic melts. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 67, 1689–1697.
- Burgisser, A., Gardner, J.E., 2005. Experimental constraints on degassing and permeability in volcanic conduit flow, *Bull. Volcanol.* 67, 42–56.

- Burgisser, A., Poussineau, S., Arbaret, L., Druitt, T.H., Giachetti, T., Bourdier, J.-L. (soumis, a). Pre-explosive conduit conditions of the 1997 Vulcanian explosions at Soufrière Hills Volcano, Montserrat : I. pressure and vesicularity distributions.
- Burgisser, A., Arbaret, L., Druitt, T.H., Giachetti, T., (soumis, b). Pre-explosive conduit conditions of the 1997 Vulcanian explosions at Soufrière Hills Volcano, Montserrat : II. Depth and overpressure distributions.
- Burnard, P., 1999. Eruption dynamics of “popping rock” from vesicle morphologies. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 92, 247–258.
- Burnham W., Jahns, R.H., 1962. A method for determining the solubility of water in silicate melts, *Am. J. Sci.* 260:721–745.
- Burnham, C.W., 1975. Water and magmas; a mixing model. *Geochim. Cosmochim. Acta* 3:1077–1084.
- Burnham, C.W. 1994. Development of the Burnham model for prediction of H₂O solubility in magmas, *Rev. Miner.* 30:123–129.
- Burton, M., Allard, P., Muré, F., La Spina, 2007a. Magmatic gas composition reveals the source depth of slug-driven Strombolian explosive activity, *Science* 317, 227–230.
- Burton, M.R., Mader, H.M., Polacci, M., 2007b. The role of gas percolation in quiescent degassing of persistently active basaltic volcanoes, *Earth Planet. Sci. Lett.* 264, 46–60.

C

- Calder, E.S., Lockett, R., Sparks, R.S.J., Voight, B., 2002. Mechanisms of lava dome instability and generation of rockfalls and Pyroclastic flows at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999. *Geological Society of London Memoir*, vol. 21, pp. 173-190.
- Candela, P.A., Piccoli, P.M., 1995. Model ore–metal partitioning from melts into vapor and vapor/brine mixtures. In *Magmas, Fluids, and Ore Deposits*, vol. 23 (ed. J. F. H. Thompson). Mineralogical Association of Canada Short Course. 101–128.
- Carman, P.C., 1956. *Flow of Gases Through Porous Media*, Butterworths Scientific Publications, London, UK.
- Cashman, K.V., Marsh, B.D., 1988. Crystal size distribution (CSD) in rocks and the kinetics and dynamics of crystallization. II. Makaopuhi Lava Lake. *Contrib. Mineral. Petrol.* 109, 431-449.
- Cashman, K.V., 1992. Groundmass crystallization of Mount St. Helens dacite, 1980-1986: a tool for interpreting shallow magmatic processes. *Contrib. Mineral. Petrol.* 109, 431-449.
- Cashman, K.V., Mangan, M.T., 1994. Physical aspects of magmatic degassing II. Constraints on vesiculation processes from textural studies of eruptive products. In: Carroll, M.R., Holloway, J.R. (eds) *Volatiles in magmas*. *Rev Mineral* 30, 447-478.
- Carroll, M.R., 2005. Chlorine solubility in evolved alkaline magmas, *Ann. Geophys.* 48, 619–631.
- Carroll, M.R., Webster, J.D., 1994. Solubilities of sulfur, noble gases, nitrogen, chlorine and fluorine in magmas. In: M.R. Carroll and J.R. Holloway, Editors, *Volatiles in Magmas*, *Rev. Mineral.* 30, 231–279.
- Carslaw, H.S., Jaeger J.C., 1959. *Conduction of heat in solids* (2nd Edition). Clarendon Press, Oxford.
- Cheng, H.C., Lemlich, R., 1983. Errors in the measurement of bubble-size distribution in foam. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals* 22, 105–109.
- Chouet, B.A., Page, R.A., Stephens, C.D., Lahr, J.C., Power, J.A., 1994. Precursory swarms of long-period events at Redoubt Volcano (1989–1990), Alaska: their origin and use as a forecasting tool. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 62, 95–135.
- Clarke, A.B., Neri, A., Voight, B., Macedonio, G., Druitt, T.H., 2002. Computational modelling of the transient dynamics of the August 1997 vulcanian explosions at Soufrière Hills Volcano, Montserrat; influence of initial conduit conditions on near-vent pyroclastic dispersal. In: Druitt,

- T.H., Kokelaar, B.P. (Eds.), The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999. Geological Society of London Memoir, vol. 21, pp. 319-348.
- Clarke, A.B., Stephens, S., Teasdale, R., Sparks, R. S. J., Diller, K., 2007. Petrologic constraints on the decompression history of magma prior to Vulcanian explosions at the Soufrière Hills volcano, Montserrat. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 161, 261-274.
- Clemens, J.D., 1984. Water contents of silicic to intermediate magmas. *Lithos.* 17, 273-287.
- Cluzel, N., 2007. Simulation expérimentale de l'ascension et de la vésiculation des magmas rhyolitiques: application à la cinétique de nucléation des bulles et implications volcanologiques. Thèse, Université Blaise Pascal, UFR Sciences, Clermont-Ferrand, 264 pp. D.U. 1749.
- Cluzel, N., Laporte, D., Provost, A., Kannewischer, I., 2008. Kinetics of heterogeneous bubble nucleation in rhyolitic melts : implications for the number density of bubbles in volcanic conduits and for pumice textures. *Contrib. Mineral. Petrol.* 156, 745-763.
- Cole, P.D., Calder, E.S., Sparks, R.S.J., Clarke, A.B., Druitt, T.H., Young, S.R., Herd, R.A., Harford, C.L., Norton, G.E. 2002. Deposits from dome-collapse and fountain-collapse Pyroclastic flows at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999. Geological Society of London Memoir, vol. 21, pp. 231-262.
- Costa, A., 2006. Permeability-porosity relationship: A reexamination of the Kozeny-Carman equation based on a fractal pore-space geometry assumption. *Geophysical Research Letters* 33(2):-Eichleberger JC, Carrigan CR, Westrich HR, Price RH (1986) Non-explosive silicic volcanism. *Nature* 323:598-602.
- Couch, S., Harford, C.L., Sparks, R.J.S., Carroll, M.R., 2003. Experimental constraints on the conditions of formation of highly calcic plagioclase microlites at the Soufrière Hills Volcano, Montserrat. *J. Petrol.* 44 (8), 1455-1475.
- Couch, S., Sparks, R.J.S., Carroll, M.R., 2003. The kinetics of degassing-induced crystallization at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. *J. Petrol.* 44 (8), 1477-1502.
- Cruz, G.G., Chouet, B.A., 1997. Long-period events, the most characteristic seismicity accompanying the emplacement and extrusion of a lava dome in Galeras Volcano, Colombia, in 1991. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 77, 121-158.

D

- Debenedetti, P., 1996. *Metastable Liquids, Concepts and Principles*, Princeton Academics Press. 411pp.
- Degruyter, W., Bachmann, O., Burgisser, A., 2009. Controls on magma permeability in the volcanic conduit during the climactic phase of the Kos Plateau Tuff eruption (Aegean Arc). *Bull. Volc.* 71, 12.
- Devine, J.D., Murphy, M.D., Rutherford, M.J., et al., 1998. Petrologic evidence for pre-eruptive pressure-temperature conditions, and recent reheating, of andesitic magma erupting at the Soufrière Hills Volcano, Montserrat, West Indies. *Geophys. Res. Lett.* 25, 3669-3672.
- Devine, J.D., Rutherford, M.J., Norton, G.E., Young, S.R., 2003. Magma storage region processes inferred from geochemistry of Fe-Ti oxides in andesitic magma, Soufriere Hills Volcano, Montserrat, WI. *Journal of Petrology* 44, 1375-1400.
- De Vries, A.J., 1957. *Foam Stability*, Rubber-Stichting, Delft. 1-77.
- Diller, K., Clarke, A.B., Voight, B., Neri, A., 2006. Mechanisms of conduit plug formation: implications for vulcanian explosions. *Geophys. Res. Lett.* 33, p. L20302.
- Di Muro, A., Villemant, B., Montagnac, G., Scaillet, B., Reynard, B., 2006a. Determination of water content and speciation in natural silicic glasses by confocal Raman spectrometry, *Geochim. Cosmochim. Acta.*, 70:2878-2884.

- Di Muro, A., Giordano, D., Villemant, B., Montagnac, G., Scaillet, B., Romano, C., 2006b. Influence of composition and thermal history of volcanic glasses on water content as determined by micro-Raman spectrometry, *Appl. Geochem. J.* 21:802–812.
- Dingwell, D.B., 1996. Volcanic dilemma: flow or blow? *Science* 273, 1054–1055.
- Dingwell, D.B. 1998. The glass transition in hydrous granitic melts. *Physics of The Earth and Planetary Interiors* 107, 1-3.
- Dingwell, D.B., Holtz, F., Behrens, H., 1997. The solubility of H₂O in peralkaline and peraluminous granitic melts, *Amer. Mineral.* 82:434–437.
- Dixon, J.E., Clague, D.A., Stolper, E.M., 1991. Degassing history of water, sulfur and carbon in submarine lavas from Kilauea volcano, Hawai'i, *Journal of Geology* 99, 371–394.
- Dixon, J.E., Stolper, E., Holloway, J.R., 1995. An experimental study of H₂O and carbon dioxide solubilities in mid-ocean ridge basaltic liquids. Part I: calibration and solubility results, *J. Petrol.* 36, 1607–1631.
- Dolejš, D., Baker, D.R., 2007a. Liquidus equilibria in the system K₂O–Na₂O–Al₂O₃–SiO₂–F₂O–H₂O to 100 MPa: I. Silicate-fluoride liquid immiscibility in anhydrous systems, *J. Petrology* 48:785–806.
- Dolejš, D., Baker, D.R., 2007b. Liquidus equilibria in the system K₂O–Na₂O–Al₂O₃–SiO₂–F₂O–H₂O to 100 MPa: II. Differentiation paths of fluorosilicic magmas in hydrous systems, *J. Petrol.* 48:807–828.
- Driesner, T., Heinrich, C.A., 2007. The system H₂O–NaCl. Part I: correlation formulae for phase relations in temperature–pressure–composition space from 0 to 1000 °C, 0 to 5000 bar, and 0 to 1 X_{NaCl}, *Geochim. Cosmochim. Acta* 71 :4880–4901.
- Druitt, T.H., Kokelaar, B.P., 2002. The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999, Geological Society, London.
- Druitt, T.H., Young, S.R., Baptie, B.J., Bonadonna, C., Calder, E.S., Clarke, A.B., Cole, P.D., Harford, C.L., Herd, R.A., Lockett, R., Ryan, G., Voight, B., 2002. Episodes of cyclic vulcanian explosive activity with fountain collapse at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (Eds.), *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999. Geological Society of London Memoir*, vol. 21, pp. 281-306.

E

- Edmonds, M., Pyle, D.M. and Oppenheimer, C.M., 2001. A model for degassing at Soufrière Hills Volcano, Montserrat, West Indies based on geochemical data. *Earth Planet. Sci. Lett.* 186, 159–173.
- Edmonds, M., Pyle, D., Oppenheimer, C., 2002. HCl emissions at Soufrière Hills Volcano, Montserrat, West Indies, during a second phase of dome building: November 1999 to October 2000, *Bull. Volcanol.* 64:21–30.
- Edmonds, M., Oppenheimer, C., Pyle, D., Herd, R., Thompson, G., 2003. SO₂ emissions from Soufrière Hills Volcano and their relationship to conduit permeability, hydrothermal interaction and degassing regime, *J. Volcanol. and Geotherm. Res.* 124, 23-43.
- Edmonds, M., Herd, R.A., Strutt, M.H., 2006. Tephra deposits associated with a large lava dome collapse, Soufriere Hills Volcano, Montserrat, 12-15 July 2003. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 153, 313-330.
- Eichelberger, J.C., Carrigan, C.R., Westrich, H.R., Price, R.H., 1986. Non-explosive silicic volcanism. *Nature.* 323, 598-602.
- Eichelberger, J.C., 1995. Silicic volcanism: ascent of viscous magmas from crustal reservoirs. *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.* 23, 41-63.

F

- Fisher, J. C., 1948. The Fracture of Liquids. *J. Appl. Phys.* 19, 1062–1067.
- Formenti, Y., Druitt, T.H., 2003. Vesicle connectivity in pyroclasts and implications for the fluidisation of fountain-collapse pyroclastic flows, Montserrat (West Indies). *Earth Planet. Sci. Lett.* 214, 561-574.
- Formenti, Y., Druitt, T.H., Kelfoun, K., 2003. Characterisation of the 1997 Vulcanian explosions of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, by video analysis. *Bull Volcanol.* 65, 587-605.
- Freda, C., Baker, D.R., Scarlato, P., 2005. Sulfur diffusion in basaltic melts, *Geochim. Cosmochim. Acta* 69, 5061–5069.
- Fundali, R.F., Melson, W.G., 1971. Ejecta velocities, magma chamber pressure and kinetic energy associated with the 1968 eruption of Arenal Volcano. *Bull. Volcanol.* 35, 383-401.

G

- Gabitov, R.I., Price, J.D., Watson, E.B., 2005. Solubility of fluorite in haplogranitic melt of variable alkalis and alumina content at 800–1000 °C and 100MPa. *Geochem. Geophys. Geosyst.* 6, Q03007.
- Gaonac'h, H., Lovejoy, S., Stix, J., Schertzer, D. 1996a. A scaling growth model for bubbles in basaltic flows. *Earth Planet. Sci. Lett.* 139, 395-409.
- Gaonac'h, H., Stix, J., Lovejoy, S., 1996b. Scaling effects on vesicles shape, size and heterogeneity of lavas from Mount Etna. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 74, 131-153.
- Gardeweg, M.C., Sparks, R.S.J., Matthews, S.J., 1998. Evolution of Lascar Volcano, Northern Chile. *Journal of the Geological Society.* January 1998.
- Gardner, J.E., Thomas, R.M.E., Jaupart, C., Tait, S., 1996. Fragmentation of magma during Plinian volcanic eruptions. *Bull. Volcanol.* 58, 144-162.
- Gardner, J.E., Hilton, M., Carroll, MER., 1999. Experimental constraints on degassing of magma: Isothermal bubble growth during continuous decompression from high pressure. *Earth Planet. Sci. Lett.* 168, 201-218.
- Gardner, J.E., Hilton, M., Carroll, MER., 2000. Bubble growth in highly viscous silicate melts during continuous decompression from high pressure. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 64, 1473-1483.
- Gardner, C. A., White, R. A., 2002. Seismicity, gas emission and deformation from 18 July to 25 September 1995 during the initial phreatic phase of the eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (Eds.), *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999.* Geological Society of London Memoir, vol. 21, pp. 567-581.
- Gardner, J.E., Denis, M.-H., 2004. Heterogeneous bubble nucleation on Fe-Ti oxide crystals in high-silica rhyolitic melts. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 68, 3587-3597.
- Gardner, J.E., 2007a. Heterogeneous bubble nucleation in highly viscous silicate melts during instantaneous decompression from high pressure. *Chem. Geol.* 236, 1-12.
- Gardner, J.E., 2007b. Bubble coalescence in rhyolitic melts during decompression from high pressure. *J. Volcanol. Geotherm. Research.* 166, 161-176.
- Giggenbach, W.F., 1996. Chemical composition of volcanic gases. In: R. Scarpa and R.I. Tilling, Editors, *Monitoring and Mitigation of Volcanic Hazards*, Springer Verlag, Berlin, 221–256 Heidelberg.
- Giordano, D., Dingwell, D.B., 2003. Non-Arrhenian multicomponent melt viscosity: a model. *Earth Planet. Sci. Lett.* 208, 337–349.
- Gonnermann, H.M., Manga, M., 2007. The fluid mechanics of volcanic eruptions. *Ann. Rev. Fluid Mech.* 39, 321-356.

- Goranson, R., 1931. The solubility of water in granitic magmas, *Am. J. Sci.* 22:481–502.
- Grimmett, G., 1999. *Percolation* (2nd Edition), Springer Verlag, New York.
- Grove, T.L., Elkins-Tanton, L.T., Parman S.W., Chatterjee, N., Muentener, O., Gaetani, G.A., 2003. Fractional crystallization and mantle melting controls on calc-alkaline differentiation trends. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 145, 515-533.
- Grove, T.L., Baker, M.B., Price, R.C., Parman, S.W., Elkins-Tanton, L.T., Chatterjee, N., Muentener, O., 2005. Magnesian andesite and dacite lavas from Mt. Shasta, northern California: products of fractional crystallization of H₂O-rich mantle melts. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 148, 542 – 565.
- Gurioli, L., Houghton, B., Cashman, K., Cioni, R., 2005. Complex changes in eruption dynamics during the 79 AD eruption of Vesuvius. *Bull Volcanol.* 67, 144-162.
- Gurioli, L., Harris, A.J.L., Houghton, B.F., Polacci, M., Ripepe, M., 2008. Textural and geophysical characterization of explosive basaltic activity at Villarrica volcano, *J. Geophys. Res.* 113, B08206.

H

- Hall, M., 2001. Guagua Pichincha. In: GVN: Bull Global Volcan Network.
- Hamada M., Laporte D., Cluzel N., Koga K.T., Kawamoto T., (accepté). Simulating bubble number density of rhyolitic pumices from Plinian eruptions: constraints from fast decompression experiments .
- Hammer, J.E., Cashman, K.V., Hoblitt, R.P., Newman, S., 1999. Degassing and microlite crystallization during pre-climatic events of the 1991 eruption of Mt. Pinatubo, Philippines. *Bull. Volcanol.* 60, 355-380.
- Hammer, J.E., Cashman, K.V., Voight, B., 2000. Magmatic processes revealed by textural and compositional trends in Merapi dome lavas. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 100, 165-192.
- Hammer, J.E., Rutherford, M.J., 2002. An experimental study of the kinetics of decompression-induced crystallization in silicic melt. *J. Geophys. Res.* 107, 148-227.
- Harford, C.L., Pringle, M.S., Sparks, R.S.J., Young, S.R., 2002. The volcanic evolution of Montserrat using ⁴⁰Ar/³⁹Ar geochronology. In: T.H. Druitt and B.P. Kokelaar, Editors, *The Eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999* vol. 21, Geological Society, London, Memoirs, 93–114.
- Harford, C.L., Sparks, R.S.J., Fallick, A.E., 2003. Degassing at the Soufrière Hills Volcano, Montserrat, recorded in matrix glass compositions, *J. Petrol.* 44, 1503–1523.
- Heiken, G., 1972. Morphology and petrography of volcanic ashes. *Geological Society of American Bulletin* 83, pp. 1961–1988.
- Heiken, G.H., 1987. Textural analysis of tephra from a rhyodacitic eruption sequence; Thira (Santorini), Greece. Marshall, John R. *Clastic Particles, scanning electron microscopy and shape analysis of sedimentary and volcanic clasts.*
- Hess, K.U., Dingwell, D.B., 1996. Viscosities of hydrous leucogranitic melts: a non-Arrhenian model. *Am. Mineral.* 81, 297-304.
- Hirth, J.P., Pound, G.M., St. Pierre, G.R., 1970. Bubble nucleation, *Metallurgical Transactions.* 4, 939–945.
- Hoblitt, R.P., Wolfe, E.W., Scott, W.E., Couchman, M.R., Pallister, J.S., Javier, D., 1996. The pre-climatic eruptions of Mount Pinatubo, June 1991. University of Washington Press, Washington. 1-126.
- Holloway, J.R., Burnham, C.W., 1972 Melting relations of basalt with equilibrium water pressure less than total pressure. *J. Petrol.* 13, 1-29.

- Holloway, R., Blank, J.G., 1994. Application of experimental results to C–O–H species in natural melts. In: M.R. Carroll and J.R. Holloway, Editors, *Volatiles in Magmas*, *Rev. Mineral.* 30, 197–230.
- Holtz, F., Pichavant, M., Barbey, P., Johannes, W., 1992. Effects of H₂O on liquidus phase relations in the haplogranite at 2 and 5 kb, *Am. Mineral.* 77:1223–1241.
- Holtz, F., Behrens, H., Dingwell, D.B., Johannes, W., 1995. H₂O solubility in haplogranitic melts: Compositional, pressure, and temperature dependence, *Amer. Mineral.* 80, 94–108.
- Hort, M., Gardner, J.E., 2000. Constraints on degassing of pumice clasts during plinian eruptions based on model calculations. *J. Geophys. Res.* 105, 25981–26001.
- Houghton, B.F., Wilson, C.J.N., 1989. A vesicularity index for pyroclastic deposits. *Bull Volcanol.* 51, 451–462.
- Houghton, B.F., Hobden, B.J., Cashman, K.V., Wilson, C.J.N., Smith, R.T., 2003. Large-scale interaction of lake water and rhyolitic magma during the 1.8 ka Taupo eruption, New Zealand. In White, J.D.L., Smellie, J.L., Clague, D.A. (eds) *Explosive subaqueous volcanism*. *Geophys. Monograph.* 140, 97–109.
- Humphreys, M.C.S., Edmonds, M., Christopher, T., Hards, V., 2009 Chlorine variations in the magma of Soufrière Hills Volcano, Montserrat: Insights from Cl in hornblende and melt inclusions *Geochimica and Cosmochimica Acta* 73(19):5693–5708.
- Hurwitz, S., Navon, O., 1994. Bubble nucleation in rhyolitic melts: experiments at high pressures, temperature, and water content. *Earth Planet. Sci. Lett.* 122, 267–280.

I, J

- Ichihara, M., Rittel, D., Sturtevant, B., 2002. Fragmentation of a porous viscoelastic material: implications to magma fragmentation, *J. Geophys. Res.* 107, 2229.
- Jaquet, O., Sparks, R.S.J., Carniel, R., 2006. Magma memory recorded by statistics of volcanic explosions at the Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: Mader, H.M., Coles, S., Connor, C. (Eds.), *Statistics in Volcanology*. Special Publications of IAVCEI, vol. 1, pp. 175–184.
- Jaupart, C., Allègre, C.J., 1991. Gas content, eruption rate and instabilities of eruption regime in silicic volcanoes. *Earth Planet. Sci. Lett.* 102, 413–429.
- Jaupart, C., 1998. Gas loss from magmas through conduit walls during eruption, *Geol. Soc. Lond. Spec. Pub.* 145, 73–90.
- Javoy, M., Pineau, F., 1991. The volatiles record of a “popping” rock from the Mid-Atlantic ridge at 14° N: chemical and isotopic composition of gas trapped in the vesicles, *Earth Planet. Sci. Lett.* 107, 598–611.
- Johnson, M.C., Anderson, A.T., Rutherford, M.J., 1994. Pre-eruptive volatile contents of magmas. In: Carroll, M.R., Holloway, J.R. (eds) *Volatiles in magmas*. *Rev Mineral* 30, 281–330.
- Jouniaux, L., Bernard, M.L., Zamora, M., Pozzi, J.P., 2000. Streaming potential in volcanic rocks from Mount Pelée. *J. Geophys. Res.* 105, 8391–8401.

K

- Kaminsky, E., Jaupart, C., 1997. Expansion and quenching of vesicular magma fragments in Plinian eruptions. *J. Geophys. Res.* 102, 12817–12203.
- Kayama, M., Nakazato, T., Nishido, H., Ninagawa, K., Gucsik, A., 2009; Cathodoluminescence Characterization of Maskelynite and Alkali Feldspar in Shergottite (Dhofar 019). *AIP Conf. Proc.* 1163:135–140. Proceedings of the International Conference Spectroscopy 2009; doi:10.1063/1.3222879.

- Kennedy, B., Spieler, O., Sceue, B., Kueppers, U., Taddeucci, J., Dingwell, D.B., 2005. Conduit implosion during Vulcanian eruptions. *Geology*. 33, 581-584.
- Ketcham, R.A., 2005a. Computational methods for quantitative analysis of three-dimensional features in geological specimens. *Geosphere* 1(32-41).
- Ketcham, R.A., 2005b. Three-dimensional grain fabric measurements using high-resolution X-ray computed tomography. *Journal of Structural Geology* 27(7):1217-1228.
- Kiprianov, A.A., 2006. Regular trends in uptake of halogens by alkali silicate glasses containing two glass-forming components. *Russ. J. App. Chem.* 79, 20–28.
- Kiprianov, A.A., Karpukhina, N.G., 2006. Oxyhalide silicate glasses. *Glass Phys. Chem.* 32,1–27.
- Klug, C., Cashman, K.V., 1991. Effects of vesicle size and shape on the vesicularity of silicic magma fragmentation (abstract). *Eos, Trans. Am. Geophys. Union.* 72:312.
- Klug, C., Cashman, K.V., 1994. Vesiculation of May 18, 1980, Mount St. Helens magma. *Geology* 22, 468-472.
- Klug, C., Cashman, K.V., 1996. Permeability development in vesiculating magmas: implications for fragmentation. *Bull. Volcanol.* 58, 87-100.
- Klug, C., Cashman, K.V., Bacon, C.R., 2002. Structure and physical characteristics of pumice from the climatic eruption of Mount Mazama (Crater Lake), Oregon. *Bull. Volcanol.* 64, 486-501.
- Kokelaar, B.P., 2002. Setting, chronology and consequences of the eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat (1995-1999). In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (Eds.), *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999. Geological Society of London Memoir*, vol. 21, pp. 1-43.
- Koyaguchi, T., Mitani, N.K., 2005. A theoretical model for fragmentation of viscous bubbly magmas in shock tubes, *Journal of Geophysical Research* 110, B10202.
- Koyaguchi, T., Scheue, B., Mitani, N.K., Melnik, O., 2008. A fragmentation criterion for highly viscous bubbly magmas estimated from shock tube experiments. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 178, 58-71.

L

- Lantuéjoul, C., 1980. On the estimation of mean values in individual analysis of particles. *Microsc. Acta.*, 5, 266-273.
- Laporte, D., 1994. Wetting behaviour of partial melts during crustal anatexis: the distribution of hydrous silicic melts in polycrystalline aggregates of quartz. *Contributions to Mineralogy and Petrology*. 116, 486–499.
- Larsen, J.F., Gardner, J.E., 2004. Experimental study of water degassing from phonolite melts: implications for volatile oversaturation during magmatic ascent. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 134, 109-124.
- Larsen, J.F., Denis, M.-H, Gardner, J.E., 2004. Experimental study of bubble coalescence in rhyolitic and phonolitic melts, *Geochim. Cosmochim. Acta* 68, 333–344.
- Lasaga, A.C., 1998. *Kinetic Theory in the Earth Sciences*, Princeton University Press, New Jersey. 811 pp.
- Lee, T.C., Kashyap, R.L., Chu, C.N., 1994. Building skeleton models via 3-D medial surface/axis thinning algorithms, *CVGIP—Graphical Models and Image Processing* 56:462–478.
- Lemlich, R., 1978. Prediction of changes in bubble size distribution due to interbubble gas diffusion in foam. *Ind. Eng. Chem. Fundam.* 17, 89–93.
- Lensky, N.G., Navon, O., Lyakhovsky, V., 2004. Bubble growth during decompression of magma: experimental and theoretical investigation. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 129, 7-22.

- Le Voyer, M., Rose-Koga, E.F., Shimizu, N., Grove, T.L., Schiano, P., (accepté). Two contrasting H₂O-rich components in primary melt inclusions from Mount Shasta, *Journal of Petrology*.
- Liebscher, A., 2007. Experimental studies in model fluid systems. In: A. Liebscher and A.H. Heinrich, Editors, *Fluid–fluid Interactions*, *Rev. Mineral. Geochem.* vol. 65:15–47.
- Lindquist, W.B., 1999. 3DMA general users manual. SUNY-Stony Brook technical report SUNYSB-AMS-99-20.
- Lindquist, W.B., Lee, S.M., Coker, D.A., Jones, K.W., Spanne, P. 1996. Medial axis analysis of void structure in three-dimensional tomographic images of porous media, *J Geophys Res-Solid Earth* 101:8297–8310.
- Lindquist, W.B., Venkatarangan, A., 1999. Investigating 3D geometry of porous media from high resolution images. *Physics and Chemistry of the Earth Part a-Solid Earth and Geodesy* 24(7):593-599.
- Lindquist, W.B., Venkatarangan, A., Dunsmuir, J., Wong, T.F., 2000. Pore and throat size distributions measured from synchrotron X-ray tomographic images of Fontainebleau sandstones. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* 105(B9):21509-21527.
- Liu, Y., Zhang, Y., 2000. Bubble growth in rhyolitic melt. *Earth Planet. Sci. Lett.* 181, 251-264.
- Liu, Y., Zhang, Y., Behrens, H., 2005. Solubility of H₂O in rhyolitic melts at low pressures and a new empirical model for mixed H₂O-CO₂ solubility in rhyolitic melts. *J. Volcanol. Geotherm. Res. Eruption Mechanisms – Insights from intercomparison of models of conduit processes.* 143, 219-235.
- Lyakhovsky, V., Hurwitz, S., Navon, O., 1996. Bubble growth in rhyolitic melts: experimental and numerical investigation. *Bull. Volcanol.* 58, 19-32.

M

- Maaloe, S., Wyllie, P.J., 1975. Water content of granite magma as deduced from the sequence of crystallization determined experimentally with water undersaturated conditions. *Contributions to Mineralogy and Petrology* 52:175–191.
- MacGregor, A.G., 1938. The Royal Society Expedition to Montserrat, BWI: the volcanic history and petrology of Montserrat, with observation on Mt. Pelé, in Martinique. *Philosophical Transactions of the Royal Society*, B229, 1-90.
- Mader, H.M., Zhang, Y., Phillips, J.C., Sparks, R.S.J., Sturtevant, B., Stolper, E., 1994. Experimental simulations of explosive degassing of magma. *Nature.* 372, 85–88.
- Mangan, M.T., Cashman, K.V., Newman, S., 1993. Vesiculation of basaltic magma during eruption. *Geology.* 21, 157-160.
- Mangan, M.T., Cashman, K.V., 1996. The structure of basaltic scoria and reticulate and inferences for vesiculation, foam formation, and fragmentation in lava fountains. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 134, 109-124.
- Mangan, M.T., Sisson, T.W., 2000. Delayed, disequilibrium degassing in rhyolite magma: decompression experiments and implications for explosive volcanism. *Earth Planet. Sci. Lett.* 183, 441-455.
- Mangan, M.T., Sisson, T.W., Hankins, W.B., 2004. Decompression experiments identify kinetics controls on explosive silicic eruptions, *Geophys. Res. Lett.* 31, L08605.
- Mangan, M.T., Sisson, T.W., 2005. Evolution of melt-vapor surface tension in silicic volcanic systems: Experiments with hydrous melts. *J. Geophys. Res.* 110.
- Marsh, B.D., 1988. Crystal size distribution (CSD) in rocks and the kinetics and dynamics of crystallization. *Contrib. Mineral. Petrol.* 99, 277-291.

- Martel, C., Dingwell, D.B., Spieler, O., Pichavant, M., Wilke, M., 2000. Fragmentation of foamed silicic melts: an experimental study, *Earth and Planetary Science Letters* 178, 47–58.
- Martel, C., Dingwell, D.B., Spieler, O., Pichavant, M., Wilke, M., 2001. Experimental fragmentation of crystal- and vesicle-bearing silicic melts. *Bulletin of Volcanology*, 63, 398–405.
- Mason, R.M., Starostin, A.B., Melnik, O.E., Sparks, R.S.J., 2006. From Vulcanian explosions to sustained explosive eruptions: the role of diffusive mass transfer in conduit flow dynamics. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 153, 148–165.
- Massol, H., Jaupart, C., 1999. The generation of gas overpressure in volcanic eruptions, *Earth Planet. Sci. Lett.* 166, 57–70.
- Massol, H., Koyaguchi, T., 2005. The effect of magma flow on nucleation of gas bubbles in a volcanic conduit. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 143, 69–88.
- Mastin, L.G., 2002. Insights into volcanic conduit flow from an open-source numerical model. *Geochem. Geophys. Geosyst.* 3, 10.1029/2001GC000192.
- Mastin, L.G., 2005. The controlling effect of viscous dissipation on magma flow in silicic conduits. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 143, 69–88.
- Mastrolorenzo, G., Brachi, L., Canzanella, A., 2001. Vesicularity of various types of pyroclastic deposits of Campi Flegrei volcanic field: evidence of analogies in magma rise and vesiculation mechanisms, *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 109, 41–53.
- McBirney, A.R., Murase, T., 1970. Factors governing the formation of pyroclastic rocks. *Bull. Volcanol.* 34, 372–384.
- Melnik, O., Sparks, R.S.J., 1999. Non-linear dynamics of lava dome extrusion. *Nature.* 402, 37–41.
- Melnik, O., 2000. Dynamics of two-phase conduit flow of high-viscosity gas-saturated magma: large variations of sustained explosive eruption intensity, *Bulletin of Volcanology* 62:153–170.
- Melnik, O., Sparks, R.S.J., 2002. Modelling of conduit flow dynamics during explosive activity at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (Eds.), *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999*. Geological Society of London Memoir, vol. 21, pp. 307–317.
- Melnik, O., Sparks, R.S.J., 2005. Dynamics of magma flow inside volcanic conduits with bubble overpressure buildup and gas loss through permeable magma. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 143, 53–68.
- Melson, W.G., Saenz, R., 1973. Volume, energy and cyclicity of eruptions at Arenal Volcano, Costa Rica. *Bull Volcanol* 37, 416–437.
- Mercalli, G., 1907. *I vulcani attivi della terra*. Milan.
- Mercier, M., Di Muro, A., Giordano, D., Métrich, N., Lesne, P., Pichavant, M., Scaillet, B., Clocchiatti, R., Montagnac, G., 2009. Influence of glass polymerisation and oxidation on micro-Raman water analysis in aluminosilicate glasses, *Geochim. et Cosmochim. Acta* 73:197–217.
- Métrich, N., Rutherford, M.J., 1992. Experimental study of chlorine behaviour in hydrous silicic melts. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 56, 607–616.
- Métrich, N., Rutherford, M.J., 1998. Low pressure crystallization paths of H₂O-saturated basaltic–hawaiitic melts from Mt. Etna: implications for open-system degassing volcanoes. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 62, 1195–1205.
- Miles, R., 1974. *Stochastic Geometry, on the elimination of edge effects in planar sampling*. J. Wiley and Sons, New York.
- Minster, J.B., Jordan, T.H., 1978. Present-day plate motions, *Journal of Geophysical Research* 83, 5331–5354.
- Moretti, R., Papale, P., Ottonello, G., 2003. A model for the saturation of C–O–H–S fluids in silicate melts, *Spec. Publ. — Geol. Soc. Lond.* 213, 81–102.
- Moretti, R., Papale, P., 2004. On the oxidation state and volatile behaviour in multicomponent gas–melt equilibria, *Chem. Geol.* 213, 265–280.

- Morrissey, M.M., Mastin, L.G., 2000. Vulcanian eruptions. In M.S.R. Editor-in-chief: H. Sigurdsson. Associate Editors: Houghton, B., Rymer, H., Stix, J. (Eds.), *Encyclopedia of Volcanoes*. Academic Press, 463–475.
- Mourtada-Bonnefoi, C.C., Laporte, D., 1999. Experimental study of homogeneous bubble nucleation in rhyolitic magmas. *Geophys. Res. Lett.* 26, 3505–3508.
- Mourtada-Bonnefoi, C.C., Laporte, D., 2002. Homogeneous bubble nucleation in rhyolitic magmas: an experimental study of the effect of H₂O and CO₂. *J. Geophys. Res.*, 107, 101029.
- Mourtada-Bonnefoi, C.C., Laporte, D., 2004. Kinetics of bubble nucleation in rhyolitic melt: an experimental investigation of the effect of ascent rate. *Earth Planet. Sci. Lett.* 218, 521–237.
- Mourtada-Bonnefoi, C.C., Mader, H.M., 2001. On the development of highly-viscous skins of liquid around bubbles during magmatic degassing. *Geophys. Res. Lett.* 28, 1647–1650.
- Mueller, S., Melnik, O., Spieler, O., Scheu, B., Dingwell, D.B., 2005. Permeability and degassing of dome lavas undergoing rapid decompression: an experimental determination, *Bull. Volcanol.* 67, 526–538.
- Müller, S., 2007. Permeability and porosity as constraints on the explosive eruption of magma: Laboratory experiments and field investigations. Thèse, Fakultät für Geowissenschaften der Ludwig-Maximilians-Universität München. 129 pp.
- Murphy, M.D., Sparks, R.S.J., Barclay, J., Carroll, M.R., Lejeune, A.M., Brewer, T.S., McDonald, R., Black, S., Young, S., 1998. The role of magma mixing in triggering the current eruption of the Soufrière Hills volcano, Montserrat, West Indies. *Geophys. Res. Lett.* 25, 3433–3436.
- Murphy, M.D., Sparks, R.S.J., Barclay, J., Carroll, M.R., Brewer, T.S., 2000. Remobilization of andesite magma by intrusion of mafic magma at the Soufriere Hills Volcano, Montserrat, West Indies. *J. Petrol.* 41, 21–42.
- Mysen, B.O., Cody, G.D., Smith, A., 2004. Solubility mechanisms of fluorine in peralkaline and meta-aluminous silicate glasses and in melts to magmatic temperatures, *Geochim. Cosmochim. Acta* 68:2745–2769.

N

- Nairn, I.A., Self, S., 1978. Explosive eruptions and pyroclastic avalanches from Ngaurahoe in February 1975. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 3, 39–60.
- Namiki, A., Manga, M., 2008. Transition between fragmentation and permeable outgassing of low viscosity magmas. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 169, 48–60.
- Naney, M.T., Swanson, S.E., 1980. The effect of Fe and Mg on crystallization in granitic systems. *American Mineralogist* 65:639–653.
- Navon, O., Lyakhovsky, V., 1998. Vesiculation processes in silicic magmas. The physics of explosive volcanic eruptions. *Geol. Soc. Lond. Spec. Pub.* 145, 27–50.
- Navon, O., Chekhmir, A., Lyakhovsky, V., 1998. Bubble growth in highly viscous melts: theory, experiments and autoexplosivity of dome lavas. *Earth Planet. Sci. Lett.* 160, 763–776.
- Newman, S., Lowenstern, J.B., 2002. VolatileCalc: a silicate melt-H₂O-CO₂ solution model written in Visual Basic for Excel. *Computers and Geosciences*. 28, 597–604.
- Nielsen, C.H., Sigurdsson, H., Quantitative methods for electron microprobe analysis of sodium in natural and synthetic glasses, *Am. Miner.* 66:547–552.

O

- Ochs, F.A., Lange, R.A., 1999. The density of hydrous magmatic liquids, *Science* 283, 1314–1317.

- Oppenheimer, C., Tsanev, V.I., Braban, C.F., Cox, R.A., Adams, J.W., Aiuppa, A., Bobrowski, N., Delmelle, P., Barclay, J., McGonigle, A.J.S., 2006. BrO formation in volcanic plumes, *Geochim. Cosmochim. Acta* 70:2935–2941.
- Orsi, G., Gallo, G., Heiken, H., Wohletz, K., Yu, E., Bonani, G., 1992. A comprehensive study of pumice formation and dispersal: The Cretaio Tephra of Ischia Italy. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 53, 329–354.

P

- Papale, P., 1997. Modeling of the solubility of a one-component H₂O or CO₂ fluid in silicate liquids, *Contrib. Mineral. Petrol.* 126(3):237–251.
- Papale, P., 1999. Modeling the solubility of a two-component H₂O+CO₂ fluid in silicate liquids, *Am. Mineral.* 84, 477–492.
- Pichavant, M., Macdonald, R., 2007. Crystallization of primitive basaltic magmas at crustal pressures and genesis of the calc-alkaline igneous suite: experimental evidence from St Vincent, Lesser Antilles arc. *Contrib. Mineral. Petrol.* 154, 535–558.
- Pindell, J. L., Barrett, S. F., 1990. Geological evolution of the Caribbean region: a plate tectonic perspective in Dengo, G., and Case, J. E., (eds.), *The Caribbean, Volume H, Decade of North American Geology*, Geological Society of America, Boulder, Colorado, p.404–432.
- Pineau, F., Javoy, M. 1983. Carbon isotopes and concentrations in mid-oceanic ridge basalts, *Earth Planet. Sci. Lett.* 62, 239–257.
- Pinel, V., Jaupart, C., 2000. The effect of edifice load on magma ascent beneath a volcano, *Philos. Trans. R. Soc. Lond., A* 358, 1515–1532.
- Platz, T., Cronin, S.J., Smith, I.E.M., Turner, M.B., Stewart, R.B., 2007. Improving the reliability of microprobe-based analyses of andesitic glass for tephra correlation. *Holocene* 17, 573–583.
- Polacci, M., Papale, P., Rosi, M., 2001. Textural heterogeneities in pumices from the climatic eruption of Mount Pinatubo, 15 June 1991, and implications for magma ascent dynamics. *Bull. Volcanol.* 63, 83–97.
- Polacci M., Baker D.R., Bai, L.P., Mancini, L., 2008. Large vesicles record pathways of degassing at basaltic volcanoes. *Bull. Volcanol.* 70, 1023–1029.
- Polacci, M., Baker, D.R., Mancini, L., Tromba, G., Zanini, F., 2006. Three-dimensional investigation of volcanic textures by X-ray microtomography and implications for conduit processes. *Geophysical Research Letters* 33(13):L13312. doi: 10.1029/2006GL026241.
- Polacci, M., Burton, M.R., La Spina, A., Murè F., Favretto S., Zanini F., 2009a. The role of syn-eruptive vésculation on explosive basaltic activity at Mt. Etna, Italy. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 179, 265–269.
- Polacci, M., Baker, D.R., Mancini, L., Favretto S., Hill R.J., 2009b. Vesiculation in magmas from Stromboli and implications for normal Strombolian activity and paroxysmal explosions in basaltic systems. *J. of Geophys. Res.* 114, B01206.
- Prodanovic, M., Lindquist, W.B., Seright, R.S., 2006. Porous structure and fluid partitioning in polyethylene cores from 3D X-ray microtomographic imaging. *Journal of Colloid and Interface Science* 298(1):282–297.
- Prodanovic, M., Lindquist, W.B., Seright, R.S., 2007. 3D image-based characterization of fluid displacement in a Berea core. *Advances in Water Resources* 30(2):214–226.
- Proussevitch, A.A., Sahagian, D.L., Kutolin, V.A., 1993. Stability of foams in silicate melts. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 59, 161–178.
- Proussevitch, A.A., Sahagian, D.L., 1996. Dynamics of coupled diffusive and compressive bubble growth in magmatic systems. *J. Geophys. Res.* 101, 17447–17455.

Proussevitch, A.A., Sahagian, D.L., 1998. Dynamics and energetics of bubble growth in magmas: analytical formulation and numerical modelling. *J. Geophys. Res.* 101, 17447-17456.

R

- Rayleigh, L., 1917. On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity, *Philosophical Magazine* 34, 94–98.
- Rea, W.J., 1974. The volcanic geology and petrology of Montserrat, West Indies. Geological Society, London. 130, 341-366.
- Richet, P., Lejeune, A.M., Holtz, F., Roux, J., 1996. Water and the viscosity of andesite melts. *Chem. Geol.* 128, pp. 185–197.
- Rivers, M.L., Sutton, S.R., Eng, P., 1999. Geoscience applications of X-ray computed microtomography, *Proceedings of SPIE, Developments in X-Ray Tomography II* vol. 3772-78–86.
- Robertson, R.E., Cole, P., Sparks, R.S.J., Harford, C., Lejeune, A.M., McGuire, W.J., Miller, A.D., Murphy, M.D., Norton, G.E., Stevens, N.S., Young, S.R., 1998. The explosive eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat. *Geophys. Res.* 25, 3689-3692.
- Robertson, E.A., Aspinall, W.P., Herd, R.A., Norton, G.E., Sparks, R.S.J., Young, S.R., 2000. The 1995-1998 eruption of the Soufrière Hills volcano, Montserrat, WI. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 358 (1770), p.1619-1637.
- Robson, G.R., Tomblin, J.F., 1966. Catalogue of active volcanoes of the world including Solfatara fields: Part 20, West Indies: Rome. International Association of Volcanologists. 56 pp.
- Roobol, M., Smith, A., 1998. Pyroclastic stratigraphy of the Soufrière Hills volcano, Montserrat-implications for the present eruption. *Geophys. Res. Lett.* 25, 3393–3396.
- Rothery, D.A., Sumner, J.M., Spieler, O., Dingwell, D.B., 2007. Impact vesiculation – a new trigger for volcanic bubble growth and degassing. *Earth Discuss.* 2, 151-167.
- Rust, A.C., Cashman, K.V., 2004. Permeability of vesicular silicic magma: inertial and hysteresis effects. *Earth Planet. Sci. Lett.* 228, 93–107.
- Rutherford, M.J., Devine, J.D., 1988. The May 18, 1980, eruption of Mount St. Helens, 3. Stability and chemistry of amphibole in the magma chamber. *J. Geophys. Res.* 93, 11949-11959.
- Rutherford, M.J., Devine, J.D. and Barclay, J., 1998. Changing magma conditions and ascent rates during the Soufriere Hills eruption on Montserrat. *GSA Today*. 8, 1–7.

S

- Saar, M.O., Manga, M., 1999. Permeability–porosity relationship in vesicular basalts, *Geophys. Res. Lett.* 26, 111–114.
- Sahagian, D. L., Proussevitch, A. A., 1998. 3D particle size distributions from 2D observations: stereology for natural applications. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 84, 173-196.
- Sahimi, M., 1994. Applications of Percolation Theory, Taylor and Francis, London.
- Sarda, P., Graham, D.W., 1990. Mid-ocean ridge popping rocks: Implications for degassing at ridge crests. *Earth Planet. Sci. Lett.* 97, 268–289.
- Schmidt, B.C., Holtz, F., Pichavant, M., 1999. Water solubility in haplogranitic melts coexisting with H₂O–H₂ fluids, *Contrib. Mineral. Petrol.* 136:213–224.
- Scriven, L.E., 1959. On the dynamics of phase growth, *Chem. Eng. Sci.* 10, 1–13.
- Self, S., Wilson, L., Nairn, I.A., 1979. Vulcanian eruption mechanisms. *Nature*. 277, 440–443.

- Shaw, H.R., 1972. Viscosities of magmatic silicate liquids: An empirical method of prediction. *Amer. J. Sci.* 272, 870–893.
- Shaw, H.R., 1974. Diffusion of H₂O in granitic liquids: Part I. Experimental data; Part II. Mass transfer in magma chambers. In: Hofmann, W., Giletti, B.J., Yoder, H.S., Yund, R.A., Editors, *Geochemical Transport and Kinetics*, Carnegie Institution of Washington, Washington, 139–170.
- Shea, T., Houghton, B.F., Gurioli, L., Cashman, K.V., Hammer, J.E., Hobden, B.J., (accepté). Textural studies of vesicles in volcanic rocks: an integrated methodology. *J. Volcanol. Res. Letters*.
- Shebanova, O.N., Lazor, P., 2003. Raman study of magnetite (Fe₃O₄): Laser-induced thermal effects and oxidation, *Journal of Raman Spectroscopy* 34:845–852.
- Shepherd, J.B., Herd, R.A., Jackson P., Watts, R., 1998. Ground deformation measurements at the Soufriere Hills Volcano Montserrat: II: Rapid static GPS measurements June 1996–June 1997, *Geophysical Research Letters* 25, 3413–3416.
- Shin, H., Lindquist, W.B., Sahagian, D.L., Song, S.-R., 2005. Analysis of the vesicular structure of basalts. *Comput Geosci* 31(4):473–487. doi:10.1016/j.cageo.2004.10.013.
- Shinohara, H., Iiyama, J.T., Matsuo, S., 1989. Partition of chlorine compounds between silicate melt and hydrothermal solutions, *Geochim. Cosmochim. Acta* 53:2617–2630.
- Shinohara, H., 1994. Exsolution of immiscible vapor and liquid phases from a crystallizing silicate melt: implications for chlorine and metal transport, *Geochim. Cosmochim. Acta* 58:5215–5221.
- Signorelli, S., Carroll, M.R., 2001. Experimental constraints on the origin of chlorine emissions at the Soufrière Hills volcano, Montserrat. *Bull. Volcanol.* 62:431–440.
- Silver, L.A., Ihinger, P.D., Stolper, E., 1990. The influence of bulk composition on the speciation of water in silicate glasses. *Contrib. Mineral. Petrol.* 104, 142–162.
- Simakin, A.G., Armienti, P., Epel’baum, M.B., 1999. Coupled degassing and crystallization: experimental study at continuous pressure drop, with application to volcanic bombs, *Bull. Volcanol.* 61, 275–287.
- Sisson, T.W., Grove, T.L., 1993. Experimental investigations of the role of H₂O in calc-alkaline differentiation and subduction zone magmatism. *Contrib. Mineral. Petrol.* 113, 143–166.
- Sobolev, A.V., Chaussidon, M., 1996. H₂O concentrations in primary melts from supra-subduction zones and mid-ocean ridges: implications for H₂O storage and recycling in the mantle, *Earth Planet. Sci. Lett.* 137, 45–55.
- Song, S.R., Jones, K.W., Lindquist, W.B., Dowd, B.A., Sahagian, D.L., 2001. Synchrotron X-ray computed microtomography: studies on vesiculated basaltic rocks. *Bull Volcanol.* 63(4):252–263. doi: 10.1007/s004450100141.
- Sparks, R.S.J., 1978. The dynamics of bubble formation and growth in magmas: A review and analysis. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 3, 1–37.
- Sparks, R.S.J., Brazier S., 1982. New evidence for degassing processes during explosive eruptions. *Nature.* 295, 218–220.
- Sparks, R.S.J., 1997. Causes and consequences of pressurisation in lava dome eruptions, *Earth and Planetary Science Letters* 150, 177–189.
- Sparks, R.S.J., Young, S.R., Barclay, J., Calder, E.S., Cole, P., Darroux, B., Davies, M.A., Druitt, T.H., Harford, C., Herd, R., James, M., Lejeune, A.M., Loughlin, S., Norton, G., Skeritt, G., Stasiuk, M.V., Stevens, N.S., Toothill, J., Wadge, G., Watts, R., 1998. Magma production and growth of the lava dome of the Soufrière Hills Volcano, Montserrat, West Indies: Novembre 1995 to December 1997. *Geophys. Res.* 129, 109–123.
- Sparks, R.S.J., Young, S.R., 2002. The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat (1995–1998): overview of scientific results. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (Eds.), *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999. Geological Society of London Memoir*, vol. 21, pp. 45–69.
- Sparks, R.S.J., 2003. Forecasting volcanic eruptions, *Earth Planet. Sci. Lett.* 210, 1–15.

- Spieler, O., Dingwell, D.B., Alidibirov, M., 2004a. Magma fragmentation speed: an experimental determination. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 129, 109-123.
- Spieler, O., Kennedy, B., Kueppers, U., Dingwell, D.B., Scheu, B., Taddeucci, J., 2004b. The fragmentation threshold of pyroclastic rocks. *Earth Planet. Sci. Lett.* 226 (1-2), 139-148.
- Stasiuk, M.V., Barclay, J., Carroll, M.R., Jaupart, C., Ratté, J.C., Sparks, R.S.J., Tait, S.R., 1996. Degassing during magma ascent in the Mule Creek vent (USA). *Bull. Volcanol.* 58, 117-130.
- Stein, S., Engeln, J.F., Weins, D.A., Fujita, K., Speed, R.C., 1982. Subduction seismicity and tectonics in the Lesser Antilles Arc. *J. of Geophys. Res.* 87, 8642-8664.
- Stix, J., Torres, R.C., Narvaez, M.L., Cortes, G.P., Raigosa, J.A., Gomez, D.M., Castonguay, R., 1997. A model of Vulcanian eruptions at Galeras Volcano, Columbia. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 77, 285-304.
- Sutton, S.R., Bertsch, P.M., Newville, M., Rivers, M., Lanzirotti, A., Eng, P., 2002. Microfluorescence and microtomography analyses of heterogeneous earth and environmental materials. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry: Applications of Synchrotron Radiation in Low-Temperature and Environmental Science*, Mineralogical Society of America 49:429-483.
- Symonds, R., Rose, W., Bluth, G., Gerlach, T., 1994. Volcanic gas studies: methods, results and applications. In: M.R. Carroll and J.R. Halloway, Editors, *Volatiles in Magmas*, Mineralogical Society of America, Washington, D.C. 1-66.

T

- Tait, S.R., Vergnolle, S., Jaupart, C., 1989. Pressure, gas content and eruption periodicity of a shallow crystallizing magma chamber. *Earth and Planet. Sci. Lett.* 92, 107-123.
- Tait, S., Thomas, R., Gardner, J., Jaupart, C., 1998. Constraints on cooling rates and permeabilities of pumice in an explosive eruption jet from colour and magnetic mineralogy. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 86, 79-91.
- Takeuchi, S., Nakashima, S., Tomiya, A., Shinohara, H., 2005. Experimental constraints on the low gas permeability of vesicular magma during decompression, *Geophys. Res. Lett.* 32, L10312.
- Tamic, N., Behrens, H., Holtz, F., 2001. The solubility of H₂O and CO₂ in rhyolitic melts in equilibrium with a mixed CO₂-H₂O fluid phase, *Chem. Geol.* 174, 333-347.
- Taylor, B.E., Eichelberger, J.C., Westrich, H.R., 1983. Hydrogen isotopic evidence of rhyolitic magma degassing during shallow intrusion and eruption. *Nature.* 306, 541-545.
- Thomas, N., Jaupart, C., Vergnolle, S., 1994. On the vesicularity of pumice. *J. Geophys. Res.* 99, 15633-15644.
- Thomas, R.M.E., Sparks, R.S.J., 1992. Cooling of tephra during fallout from eruption columns. *Bull. Volcanol.* 54, 542-553.
- Thomas, S.M., Thomas, R., Davidson, P., Reichart, P., Koch-Müller, M., Dollinger, G., 2008. Application of Raman spectroscopy to quantify trace water concentration in glasses and garnets, *Am. Mineral.* 93:1550-1557.
- Thomas, R., Métrich, N., Scaillet, B., Kamenetsky, V., Davidson, P., 2008. Determination of water in Fe-rich basalt glasses with confocal micro-Raman spectroscopy, *Z. Geol. Wiss.* 36:31-37.
- Toramaru, A., 1988. Formation of propagation pattern in two-phase flow systems with application to volcanic eruptions. *Geophys. Journ.* 95, 613-623.
- Toramaru, A., 1989. Vesiculation process and bubble size distributions in ascending magmas with constant velocities. *J. Geotherm. Res.* 94, 17523-17542.
- Toramaru, A., 1990. Measurement of bubble size distributions in vesiculated rocks with implications for quantitative estimates of eruption processes. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 43, 71-90.

- Toramaru, A., 1995. Numerical study of nucleation and growth of bubbles in viscous magmas, *J. Geophys. Res.* 100, 1913–1931.
- Toramaru, A., 2006. BND (bubble number density) decompression rate meter for explosive volcanic eruptions. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 154, 303–316.
- Tuffen, H., Dingwell, D.B., Pinkerton, H., 2003. Repeated fracture and healing of silicic magma generate flow banding and earthquakes? *Geology*. 31, 1089–1092.
- Turcotte, D.L., 1992. *Fractals and Chaos in Geology and Geophysics*, Cambridge Univ. Press, New York.

V

- Verhoogen, J., 1951. Mechanics of ash formation, *Am. J. Sci.* 249, 729–739.
- Villemant, B., Boudon, G., 1998. Transition between dome-forming and plinian eruptive styles: H₂O and Cl degassing behaviour. *Nature* 392, 65–69.
- Villemant, B., Boudon, G. 1999. H₂O and halogen (F, Cl, Br) behaviour during shallow magma degassing processes, *Earth Planet. Sci. Lett.* 168:271–286.
- Villemant, B., Boudon, G., Nougirgat, S., Poteaux S., Michel, A., 2003. Water and halogens in volcanic clasts: tracers of degassing processes during plinian and dome-building eruptions, *Geol. Soc. London, Spec. Publ.* 213:63–79.
- Villemant, B., Mouatt, J., Michel, A., 2008. Andesitic magma degassing investigated through H₂O vapour–melt partitioning of halogens at Soufrière Hills Volcano, Montserrat (Lesser Antilles) *Earth and Planetary Science Letters*. 269(1-2):212–229.
- Voight, B., Hoblitt, R.P., Clarke, A.B., Lockhart, A.B., Miller, A.D., Lynch, L., McMahon, J., 1998. Remarkable cyclic ground deformation monitored in real time on Montserrat and its use in eruption forecasting. *Geophys. Res. Lett.* 25, 3405–3408.
- Voight, B., Sparks, R.J.S., Miller, A.D., Stewart, R.C., Hoblitt, R.P., Clarke, A.B., Ewart, J., MVO Staff, 1999. Magma flow instability and cyclic activity at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. *Science* 283 (5405), 1138–1142.
- Vougioukalakis, G., 1995. Santorini “The Volcano”. Institute for the study and monitoring of the Santorini volcano, Firostefani, Santorini, Greece.

W

- Wadell, H. 1935. Volume, Shape and Roundness of Quartz Particles. *Journal of Geology* 43, 250–280.
- Wadge, G., 1984. Comparison of volcanic production rates and subduction rates in the Lesser Antilles and Central America, *Geology* 12, 555–558.
- Wadge, J., Shepherd, J.B., 1984. Segmentation of the Lesser Antilles subduction zone, *Earth and Planetary Science Letters*. 71, 297–304.
- Wadge, G., Isaacs, M.C., 1988. Mapping the volcanic hazard from Soufriere Hills Volcano, Montserrat, West Indies, using an image processor. *J. Geol. Soc. London* 145, pp. 541–551.
- Walker, G., 1969. The breaking of magma. *Geol Mag* 106:166–173.
- Walker, G., 1982. Eruptions of andesitic volcanoes. In: Thorpe RS (ed) *Andesites: orogenic andesites and related rocks*. Wiley, New York. 403–413.
- Wallace, P.J., Anderson, A.T., 1998. Effects of eruption and lava drainback on the H₂O contents of basaltic magmas at Kilauea volcano, *Bull. Volcanol.* 59, 327–344.

- Wallace, P.J., Carn, S.A., Rose, W.I., Gerlach, T.M., Bluth, G., 2003. Integrating petrologic and remote sensing perspectives on magmatic volatiles and volcanic degassing, *EOS Trans.* 15 AGU, 84, 446–447.
- Wallace, P.J., 2005. Volatiles in subduction zone magmas; concentrations and fluxes based on melt inclusion and volcanic gas data, *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 140 (1–3), 217–240.
- Watson, I.M., Oppenheimer, C., Voight, B., Francis, P.W., Clarke, A., Stix, J., Miller, A., Pyle, D.M.; Burton, M.R., Young, S.R., Norton, G., Loughlin, S., Darroux, B., MVO Staff, 2000. The relationship between degassing and ground deformation at Soufrière Hills Volcano, Montserrat, *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 98, 117–126.
- Watts, R.B., Herd, R.A., Sparks, R.S.J., Young, S.R., 2002. Growth patterns and emplacement of the andesitic lava dome at the Soufrière Hills Volcano, Montserrat: July 1995 to March 1998. In: Druitt, T.H., Kokelaar, B.P. (Eds.), *The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999*. Geological Society of London Memoir, vol. 21, pp. 115–152.
- Webster, J.D., Holloway, J.R., 1988. Experimental constraints on the partitioning of Cl between topaz rhyolite melt and H₂O and H₂O+CO₂ fluids: new implications for granitic differentiation and ore deposition, *Geochim. Cosmochim. Acta* 52:2091–2105.
- Webster, J.D., 1992. Fluid-melt interactions involving Cl-rich granites: experimental study from 2 to 8 kbar, *Geochim. Cosmochim. Acta* 56:679–687.
- Webster, J.D., 1997. Exsolution of magmatic volatile phases from Cl-enriched mineralizing granitic magmas and implications for ore metal transport. *Geochim. Cosmochim. Acta*. 61 (5), 1017–1029.
- Webster, D., Kinzler, R.J., Mathez, A., 1999. Chloride and water solubility in basalt and andesite melts and implications for magmatic degassing. *Geochim. Cosmochim. Acta* 63 (1999), pp. 729–738.
- Westercamp, D., Tazieff, H., 1980. Martinique, Guadeloupe, Saint-Martin, La Désirade. Guides géologiques régionaux. Masson.
- Westrich, H.R., Eichelberger, J.C., 1994. Gas transport and bubble collapse in rhyolitic magma: an experimental approach. *Bull. Volcanol.* 56, 447–458.
- Whitney, P.R., 1975. Relationship of manganese–iron oxides and associated heavy metals to grain size in stream sediments, *Journal of Geochemical Exploration*. 4:251–263.
- Widiwijayanti, C., Clarke, A.B., Elsworth, D., Voight, B., 2005. Geodetic constraints on the shallow magma system at Soufrière Hills Volcano, Montserrat. *Geophys. Res. Lett.* 32, L11309.
- Witham A.G., Sparks R.S.J., 1986. Pumice. *Bull. Volcanol.* 48, 209–223.
- Woods, A.W., Koyaguchi, T., 1994. Transitions between explosive and effusive volcanic eruptions, *Nature* 370, 641–644.
- Wright, H.M.N., Cashman, K.V., Rosi, M., Cioni, R., 2007. Breadcrust bombs as indicators of Vulcanian eruption dynamics at Guagua Pichincha volcano, Ecuador. *Bull. Volcanol.* 69, 281–300.
- Wyllie, P.J., Huang, W.-L., 1976. Carbonation and melting reactions in the system CaO–MgO–SiO₂–CO₂ at mantle pressures with geophysical and petrological applications, *Contrib. Mineral. Petrol.* 54 79–107.

Y

- Yamada, K., Tanaka, H., Nakazawa, K., Emori, H., 2005. A new theory of bubble formation in magma, *J. Geophys. Res.* 110, p. B02203.
- Young, S.R., Sparks, R.S.J., Aspinall, W.P., Lynch, L.L., Miller, A.D., Robertson, R., Shepherd, J.B., 1998. Overview of the eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, July 18 1995 to December 1997, *Geophys. Res. Lett.* 25, 3389–3392.

Z

- Zellmer, G.F., Hawkesworth, C.J., Sparks, R.S.J., Thomas, L.E., Harford, C.L., Brewer, T.S., Loughlin, S.C., 2003. Geochemical evolution of the Soufrière Hills volcano, Montserrat, Lesser Antilles volcanic arc, *J. Petrol.* 44(8):1349–1374.
- Zhang, Y., 1999. H₂O in rhyolitic glasses and melts: measurement, speciation, solubility, and diffusion. *Rev. Geophys.* 37, 493-516.
- Zhang, Y., Behrens, H., 2000. H₂O diffusion in rhyolitic melts and glasses. *Chem. Geology* 169, 243-262.

Annexe 1 : Le pycnomètre à hélium

Principe de la mesure

Le pycnomètre à hélium utilisé pour cette étude est le « Multivolume Pycnometer 1305 » de Micromeritics, installé au Laboratoire des Oxydes et Fluorures de l'Université du Maine, au Mans. Le principe de cet appareil est assez simple : après calibrage de l'appareil, l'échantillon (claste ou poudre), est disposé dans une cellule V_{cell} de volume connu (Figure A1.1). Le calcul du volume de l'échantillon se fait via la mesure de deux pressions ; l'hélium est d'abord introduit uniquement dans V_{cell} grâce à la valve de remplissage, et une première pression est lue au niveau du capteur de pression. Puis le gaz est détendu dans un volume d'expansion connu (V_{exp}) en ouvrant la valve prep./test et une deuxième pression est obtenue. Finalement, le circuit et les cellules sont vidangés de l'hélium qu'ils contiennent grâce à la valve de vidange et une nouvelle mesure peut être effectuée.

Ce modèle de pycnomètre possède trois cellules à échantillon de volumes différents ($V_{\text{cell}} = 5, 35$ ou 150 cm^3) afin de garantir une précision assez grande quel que soit le volume d'échantillon analysé. Cependant, une seule cellule étant utilisée à la fois, le schéma de l'appareil (Figure A.1.1) a été simplifié. Pour notre étude, nous avons utilisé les cellules de 35 et de 150 cm^3 .

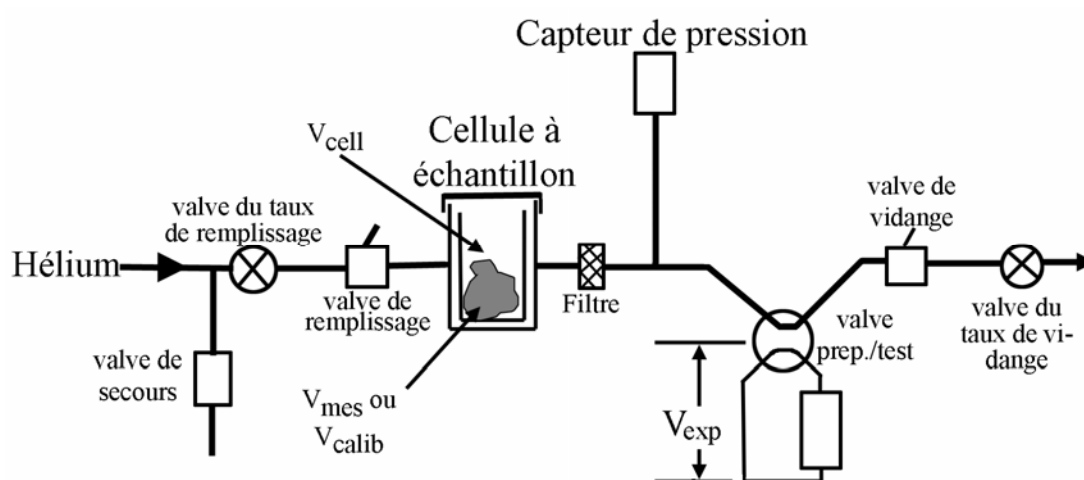


Figure A1.1 : schéma du pycnomètre à hélium « Multivolume Pycnometer 1305 ».

Calibrage de l'appareil

Avant toute mesure, il faut déterminer le volume exact de la cellule à échantillon (V_{cell}) ainsi que le volume d'expansion (V_{exp}). Ce calibrage est effectué à l'aide d'une bille d'acier dont le volume (V_{calib}) est parfaitement connu (mesure indépendante et certifiée). Dans

un premier temps on mesure les pressions P_1 puis P_2 de V_{cell} vide (sans la bille d'acier). La loi des gaz parfaits nous donne pour ces deux états :

$$P_1 V_{cell} = P_2 (V_{cell} + V_{exp}) \quad [A.1]$$

D'où:

$$V_{exp} = V_{cell} \left(\frac{P_1 - P_2}{P_2} \right) \quad [A.2]$$

La bille d'acier de volume V_{calib} est ensuite introduite dans V_{cell} et on mesure les pressions P_1^* et P_2^* avant et après expansion respectivement. On obtient alors le même type d'équation que [A.1] :

$$P_1^* (V_{cell} - V_{calib}) = P_2^* (V_{cell} + V_{exp} - V_{calib}) \quad [A.3]$$

En substituant l'équation [A.2] dans [A.3], nous obtenons :

$$P_1^* (V_{cell} - V_{calib}) = P_2^* (V_{cell} - V_{calib}) + P_2^* V_{cell} \left(\frac{P_1 - P_2}{P_2} \right) \quad [A.4]$$

Ce qui conduit à la définition des volumes V_{cell} et V_{exp} suivants :

$$V_{cell} = \frac{V_{calib} (P_1^* - P_2^*)}{\left[(P_1^* - P_2^*) - P_2^* \left(\frac{P_1 - P_2}{P_2} \right) \right]} \quad [A.5]$$

$$V_{exp} = \frac{V_{calib} (P_1^* - P_2^*)}{\left[(P_1^* - P_2^*) - P_2^* \left(\frac{P_1 - P_2}{P_2} \right) \right]} \left(\frac{P_1 - P_2}{P_2} \right) \quad [A.6]$$

Chacune des mesures de V_{cell} et V_{exp} est effectuée à trois reprises et les moyennes de ces trois mesures sont utilisées par la suite pour les calculs de volume d'échantillon.

Calcul du volume de l'échantillon

Le calcul du volume d'un échantillon via le pycnomètre à hélium repose sur le principe suivant : supposons, une fois l'échantillon de volume inconnu V_{mes} introduit dans la cellule, que V_{cell} et V_{exp} sont séparés (valve prep./test fermée) et à température ambiante T . Le

volume V_{cell} est alors occupé par l'échantillon (V_{mes}) et par n_c mole d'hélium à pression P_1 . La loi des gaz parfaits nous donne alors :

$$P_1^* (V_{cell} - V_{mes}) = n_c RT \quad [A.7]$$

Où R est la constante des gaz parfaits égale à $8,314 \text{ J.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$. Au même moment, le volume d'expansion (V_{exp}) est occupé par n_e mole d'hélium à pression ambiante P_a et à température T :

$$P_a V_{exp} = n_e RT \quad [A.8]$$

L'ouverture de la valve prep./test provoque la détente du gaz dans le volume $V_{cell} + V_{exp}$ et la chute de la pression à une valeur P_2 . De nouveau, la loi des gaz parfaits nous donne :

$$P_2 (V_{cell} + V_{exp} - V_{mes}) = RT(n_c + n_e) \quad [A.9]$$

En substituant les équations [A.7] et [A.8] dans l'équation [A.9], on obtient :

$$P_2 (V_{cell} - V_{mes} + V_{exp}) = P_a V_{exp} + P_1 (V_{cell} - V_{mes}) \quad [A.10]$$

C'est-à-dire :

$$V_{cell} - V_{mes} = V_{exp} \left(\frac{P_a - P_2}{P_2 - P_1} \right) = V_{exp} \left(\frac{P_a - P_2}{(P_2 - P_a) - (P_1 - P_a)} \right) = \frac{V_{exp}}{\left(\frac{P_1 - P_a}{P_2 - P_a} \right) - 1} \quad [A.11]$$

D'où finalement le volume de l'échantillon qui est égal à :

$$V_{mes} = V_{cell} - \frac{V_{exp}}{\left(\frac{P_1 - P_a}{P_2 - P_a} \right) - 1} = V_{cell} - \frac{V_{exp}}{\frac{P_{1g}}{P_{2g}} - 1} \quad [A.12]$$

Où P_{1g} et P_{2g} sont les pressions lues sur le capteur de pression, P_1 , P_2 et P_a étant les pressions absolues.

V_{cell} et V_{exp} étant connus suite au calibrage, la mesure des pressions P_{1g} et P_{2g} suffit pour calculer le volume de l'échantillon. Chaque mesure de volume a été répétée cinq fois pour chaque échantillon afin de calculer un volume V_{mes} moyen.

Annexe 2 : Erreurs associées aux mesures de pycnométrie à hélium

Afin d'obtenir les erreurs sur les vésicularités totale, connectée et isolée, il faut propager les erreurs des différentes variables dont elles dépendent (volumes et masses).

Soit Y une fonction de n variables aléatoires X_i , entachées d'erreurs statistiques définies par leur écart-type σ_{xi} . Si les erreurs sur les différentes variables sont indépendantes les unes des autres (notre cas), l'écart-type σ_y , sur la fonction Y , se calculera selon la loi de propagation des erreurs :

$$\sigma_Y^2 = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial Y}{\partial X_i} \right)^2 \sigma_{x_i}^2 \quad [\text{A.13}]$$

Comme détaillé précédemment, le volume total des ponces V_{tot} est calculé en utilisant les longueurs moyennes de chacun des côtés. Les dix mesures effectuées sur chacune des longueurs $L1$, $L2$ et $L3$ ont permis de définir un écart-type pour la mesure de chaque longueur (σ_{L1} , σ_{L2} , σ_{L3}). En utilisant [39] et [40], on obtient l'erreur associée à la mesure du volume total du parallélépipède :

$$\sigma_{2L1V_{tot}} = \sqrt{(\sigma_{L1} \overline{L_2 L_3})^2 + (\sigma_{L2} \overline{L_1 L_3})^2 + (\sigma_{L3} \overline{L_1 L_2})^2} \quad [\text{A.14}]$$

La propagation d'erreur pour la densité de la phase solide donne :

$$\sigma_{\rho_{solide}} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{m_{solide}}}{V_{solide}} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{V_{solide}} m_{solide}}{V_{solide}^2} \right)^2} \quad [\text{A.15}]$$

Avec $\sigma_{m_{solide}}$ et $\sigma_{V_{solide}}$ qui sont respectivement les erreurs liées à la mesure de la masse de la poudre (erreur de la balance soit $\pm 0,1$ mg dans notre cas) et à la mesure du volume de poudre (écart-type des cinq mesures faites sur la poudre à l'aide du pycnomètre).

L'erreur associée au calcul de la vésicularité totale (X_{tot}) est donc obtenue à partir de [37] et [41] :

$$\sigma_{X_{tot}} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{m_{tot}}}{\rho_{solide} V_{tot}} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\rho_{solide}} m_{tot}}{V_{tot} (\rho_{solide}^2)} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{V_{tot}} m_{tot}}{(V_{tot}^2) \rho_{solide}} \right)^2} \quad [\text{A.16}]$$

L'erreur associée au calcul de la vésicularité connectée est calculée en utilisant [A.13] et [A.16] et est définie par :

$$\sigma_{X_{conec}} = \sqrt{\left(\frac{V_{mes}\sigma_{V_{tot}}}{V_{tot}^2}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{V_{mes}}}{V_{tot}}\right)^2} \quad [\text{A.17}]$$

Enfin, l'erreur associée à la vésicularité isolée (X_{isol}) est égale à :

$$\sigma_{X_{isol}} = \sqrt{\sigma_{X_{tot}}^2 + \sigma_{X_{conec}}^2} \quad [\text{A.18}]$$